

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
15. November 2001 (15.11.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/85705 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **C07D 257/04**,  
405/04, 405/06, A01N 43/713, 47/34

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/04899

(22) Internationales Anmeldedatum:  
2. Mai 2001 (02.05.2001)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
100 23 430.5 12. Mai 2000 (12.05.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): **BAYER AKTIENGESellschaft** [DE/DE];  
51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **MAURER, Fritz**  
[DE/DE]; Brahmsstrasse 36, 40789 Monheim (DE).  
**ERDELEN, Christoph** [DE/DE]; Unterbüscherhof 15,  
42799 Leichlingen (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER AKTIENGESellschaft**;  
51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH,  
GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC,  
LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW,  
MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK,  
SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA,  
ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,  
TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK,  
ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR),  
OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML,  
MR, NE, SN, TD, TG).

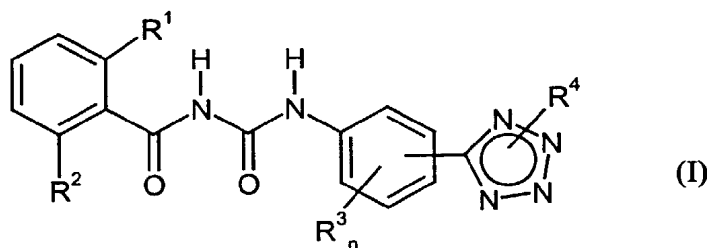
**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden  
Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen  
eintreffen

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen  
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on  
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe  
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: SUBSTITUTED N-BENZOYL-N'-(TETRAZOLYLPHENYL)-UREAS AND THEIR USE AS PEST CONTROL AGENTS

(54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE N-BENZOYL-N'-(TETRAZOLYLPHENYL)-HARNSTOFFE UND IHRE VERWENDUNG ALS SCHÄDLINGSBEKÄMPFUNGSMITTEL



(57) Abstract: The invention relates to novel substituted N-benzoyl-N'-(tetrazolylphenyl)-ureas of formula (I), wherein R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> and n have the meanings given in the description, to methods for producing these compounds and to their use as pest control agents.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft neue substituierte N-Benzoyl-N'-(tetrazolylphenyl)-harnstoffe

der Formel (I), in welcher R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und n die in der Beschreibung angegebene Bedeutung haben, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel.

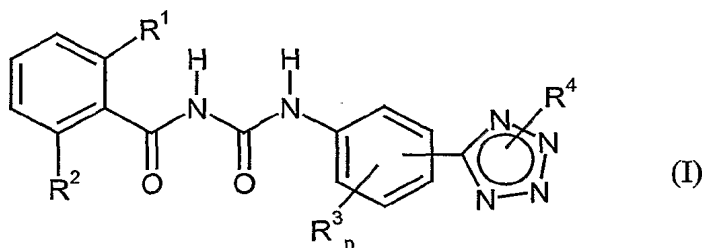
WO 01/85705 A1

SUBSTITUIERTE N-BENZOYL-N'-(TETRAZOLYLPHENYL)-HARNSTOFFE UND IHRE VERWENDUNG ALS SCHÄDLINGSBEKÄMPFUNGSMITTEL

Die vorliegende Erfindung betrifft neue substituierte N-Benzoyl-N'-(tetrazolylphenyl)-harnstoffe, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel.

Es ist bekannt, dass bestimmte substituierte N-(Benzoyl)-N'-(heterocylylphenyl)-harnstoffe insektizide und akarizide Eigenschaften aufweisen (vgl. z.B. DE-A 37 32 541, EP-A 0 242 322 oder US 4,950,678). Die Wirkung dieser Verbindungen ist jedoch, insbesondere bei niedrigen Wirkstoffkonzentrationen und Aufwandmengen nicht immer ganz zufriedenstellend.

Es wurden neue substituierte N-Benzoyl-N'-(tetrazolylphenyl)-harnstoffe der Formel (I) gefunden,



in welcher

R<sup>1</sup> für Halogen steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff oder Halogen steht,

R<sup>3</sup> für Halogen, Alkyl oder Halogenalkyl steht,

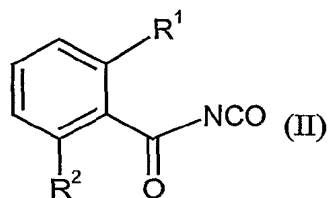
25

n für 0, 1 oder 2 steht und

R<sup>4</sup> für Wasserstoff, gegebenenfalls substituiertes Alkyl, gegebenenfalls substituiertes Alkenyl, Alkoxyalkyl, Alkoxycarbonylalkyl, Alkylcarbonyloxyalkyl, Alkylsulfonyl, Diaminocarbonyl; jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylalkyl oder Arylsulfonyl; jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl oder jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocycl oder Heterocyclalkyl steht.

Weiterhin wurde gefunden, dass man die substituierten N-Benzoyl-N'-(tetrazolyl-phenyl)-harnstoffe der Formel (I) erhält, wenn man

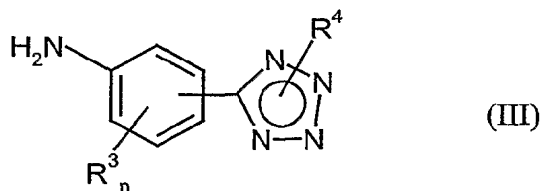
a) Benzoylisocyanate der Formel (II)



in welcher

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

mit Tetrazolanilinen der Formel (III)

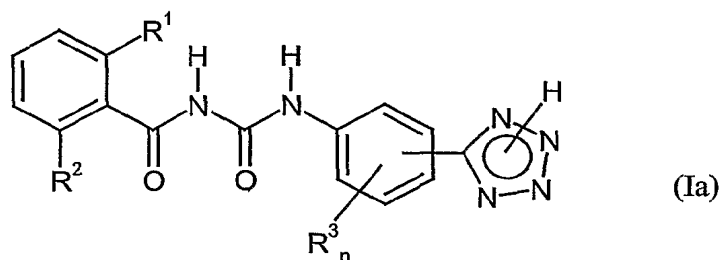


in welcher

R<sup>3</sup>, n und R<sup>4</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt; und

- b) gegebenenfalls die so erhaltenen erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (Ia)



5

in welcher

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $n$  die oben angegebene Bedeutung haben,

10 mit Verbindungen der Formel (IV)



in welcher

15

$R^{4-1}$  die oben für  $R^4$  angegebene Bedeutung mit Ausnahme von Wasserstoff besitzt und

E für eine anionische Abgangsgruppe steht,

20

in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen substituierten N-Benzoyl-N'-(tetrazolyl-phenyl)-harnstoffe der Formel (I) stark ausgeprägte biologische Eigenschaften besitzen und vor allem zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere von Insekten, Spinnentieren und Nematoden, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im

25

Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen, geeignet sind.

Die erfindungsgemäßen substituierten N-Benzoyl-N'-(tetrazolylphenyl)-harnstoffe  
5 sind durch die Formel (I) allgemein definiert.

Bevorzugte Substituenten bzw. Bereiche der in den oben und nachstehend erwähnten  
Formeln aufgeführten Reste werden im folgenden erläutert:

10  $R^1$  steht bevorzugt Fluor oder Chlor.

$R^2$  steht bevorzugt für Wasserstoff, Fluor oder Chlor.

15  $R^3$  steht bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl.

n steht bevorzugt für 0, 1 oder 2.

20  $R^4$  steht bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkenyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyloxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-aminocarbonyl, für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen, Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes  
25 Phenyl, Benzyl oder Phenylsulfonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cyclohexyl-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, sowie für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes fünf- oder sechsgliedriges Heterocyclyl oder fünf- oder sechsgliedriges Heterocyclyl-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl mit jeweils 1  
30 oder 2 Heteroatomen, wie N-, O- oder S-Atomen.

- R<sup>1</sup> steht besonders bevorzugt für Fluor oder Chlor.
- R<sup>2</sup> steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor oder Chlor.
- 5 R<sup>3</sup> steht besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Methyl oder Trifluormethyl.
- n steht besonders bevorzugt für 0, 1 oder 2.
- 10 R<sup>4</sup> steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl bzw. C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkenyl mit jeweils 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen aus der Reihe Fluor, Chlor und Brom; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyloxy-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylsulfonyl, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl)-aminocarbonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen, Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen aus der Reihe Fluor, Chlor und Brom substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylsulfonyl; für jeweils gegebenenfalls
- 15 einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl; sowie für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Tetrahydrofuranyl, Tetrahydrofuranylmethyl, Tetrahydropyranyl oder Tetrahydropyranylmethyl.
- 20
- 25 R<sup>1</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Fluor oder Chlor.
- R<sup>2</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor oder Chlor.
- 30 R<sup>3</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Fluor, Chlor oder Trifluormethyl.

- n steht ganz besonders bevorzugt für 0, 1 oder 2.
- R<sup>4</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff; Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl; 1-Ethyl-1-methyl-propyl, 1,1-Dimethylpropyl, 2-Methyl-2-propenyl, Fluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, 1,1-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 3,4,4-Trifluor-3-butenyl, 4,4-Difluor-3-butenyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, Methylcarbonyloxymethyl, Ethylcarbonyloxymethyl, Methylcarbonyloxyethyl, Ethylcarbonyloxyethyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Dimethylaminocarbonyl, Methylethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Trifluormethyl oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylsulfonyl; sowie für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach, gleich oder verschieden durch Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Cyclohexyl, Tetrahydropyranyl oder Tetrahydropyranylmethyl.
- R<sup>1</sup> steht hervorgehoben für Fluor oder Chlor.
- R<sup>2</sup> steht hervorgehoben für Wasserstoff, Fluor oder Chlor.
- R<sup>3</sup> steht hervorgehoben für Fluor, Chlor oder Trifluormethyl,
- n steht hervorgehoben für 0, 1 oder 2.
- R<sup>4</sup> steht hervorgehoben für Wasserstoff; Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl; 1-Ethyl-1-methyl-propyl, 1,1-Dimethylpropyl, 2-Methyl-2-propenyl, Fluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, 1,1-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 3,4,4-Trifluor-3-butenyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, für

jeweils gegebenenfalls durch Brom substituiertes Phenyl oder Benzyl, für  
durch Methyl substituiertes Cyclohexyl, für Tetrahydropyranylmethyl oder  
Tetrahydropyranyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl,  
Ethoxyethyl, Methylcarbonyloxymethyl, Ethylcarbonyloxymethyl, Methyl-  
carbonyloxyethyl, Ethylcarbonyloxyethyl.

Bevorzugt werden Verbindungen der Formel (I), in der am Phenylring in 4-Position  
das Tetrazol substituiert ist.

Ebenfalls bevorzugt werden Verbindungen der Formel (I), in der am Phenylring in 2-  
Position das Tetrazol substituiert ist.

Ebenfalls bevorzugt werden Verbindungen der Formel (I), in der am Phenylring in 3-  
Position das Tetrazol substituiert ist.

Die oben aufgeführten oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen  
bzw. Erläuterungen gelten für die Endprodukte und für die Ausgangs- und Zwischen-  
produkte entsprechend. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch  
zwischen den jeweiligen Vorzugsbereichen, beliebig kombiniert werden.

Erfindungsgemäß bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen  
eine Kombination der vorstehend als bevorzugt (vorzugsweise) aufgeführten Bedeu-  
tungen vorliegt.

Erfindungsgemäß besonders bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in  
welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Be-  
deutungen vorliegt.

Erfindungsgemäß ganz besonders bevorzugt werden die Verbindungen der Formel  
(I), in welchen eine Kombination der vorstehend als ganz besonders bevorzugt aufge-  
führten Bedeutungen vorliegt.

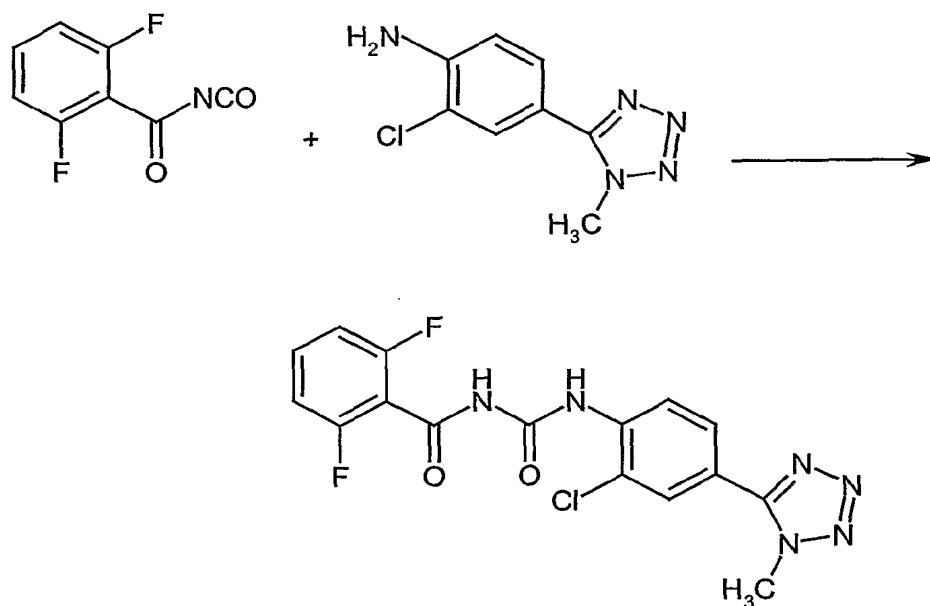


Erfindungsgemäß hervorgehoben werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als hervorgehoben aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

5

In den oben und nachstehend aufgeführten Restdefinitionen sind Kohlenwasserstoffreste, wie Alkyl - auch in Verbindungen mit Heteroatomen wie Alkoxy - soweit möglich jeweils geradkettig oder verzweigt.

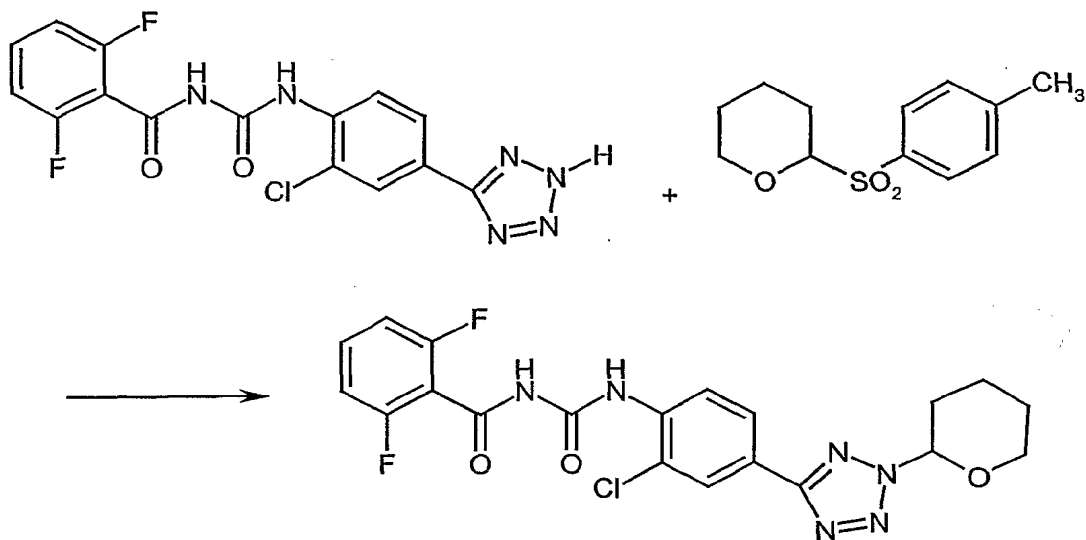
10 Verwendet man beispielsweise 2,6-Difluorbenzoylisocyanat und 1-Methyl-5-(3-chlor-4-aminophenyl)-tetrazol als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:



15

Verwendet man beispielsweise N-(2,6-Difluorbenzoyl)-N'-(2-chlor-4-tetrazol-5-yl)-phenyl)-harnstoff und 2-(4-Methylsulfonylphenyl)-tetrahydropyran als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf der erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

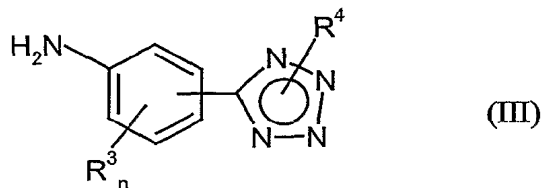
20



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Benzoylisocyanate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. Die Benzoylisocyanate der Formel (II) sind bekannt und können nach allgemein bekannten Methoden erhalten werden.

Die außerdem beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Tetrazolaniline sind durch die Formel (III) allgemein definiert. Die Tetrazolaniline der Formel (III) sind teilweise bekannt (s. z.B. Synthesis 1998, S. 910-914).

Die neuen Tetrazolaniline der Formel (III)



in welcher

$\text{R}^3$  für Chlor, Fluor, Trifluormethyl oder Methyl steht,

n für 1 oder 2 steht,

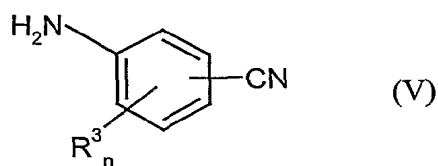
5  $R^4$  die oben angegebene Bedeutung hat und die Substitutionsposition des Tetrazols am Phenylring in 2-, 3- oder 4-Stellung ist,

sind ebenfalls Gegenstand dieser Anmeldung.

10 Ebenfalls Gegenstand dieser Anmeldung sind Verbindungen der Formel (III) in welcher n für 0 steht und  $R^4$  und die Substitutionsposition des Tetrazols am Phenylring die in der Tabelle angegebene Bedeutung haben.

$R^4$	Substitutionsposition des Tetrazols am Phenylring
$\begin{array}{c} 2-\text{C}(\text{C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	4
$\begin{array}{c} 2-\text{C}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	4
2-CHF <sub>2</sub>	3 oder 4
1-CHF <sub>2</sub>	3 oder 4
H	3 oder 4
2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	3 oder 4

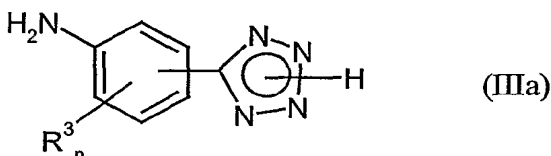
15 Sie können in allgemein bekannter Art und Weise erhalten werden, indem man bekannte Aminobenzonitrile der Formel (V)



in welcher

$R^3$  und  $n$  die oben angegebene Bedeutung haben,

- 5 mit Natriumazid und zum Beispiel Triethylamin-hydrochlorid in Gegenwart eines inerten Lösungsmittels, wie beispielsweise Acetonitril, Dimethylformamid oder Toluol vorzugsweise unter Rückfluss umgesetzt (vgl. auch die Herstellungsbeispiele) und gegebenenfalls die so erhaltenen Tetrazolaniline der Formel (IIIa)



10

in welcher

$R^3$  und  $n$  die oben angegebene Bedeutung haben,

- 15 gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren (b) mit Verbindungen der Formel (IV) umgesetzt (vgl. auch die Herstellungsbeispiele).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Verbindungen sind durch die Formel (IV) allgemein definiert.

20

In dieser Formel steht E vorzugsweise für Chlor, Brom, Iod, Acetoxy, Tosyl oder Mesyl.

- 25 Die Verbindungen der Formel (IV) sind bekannt und/oder können in bekannter Art und Weise hergestellt werden, gegebenenfalls auch in situ direkt weiter umgesetzt werden (vgl. auch die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen prak-

tisch alle inerten organischen Lösungsmittel in Frage. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol und o-Dichlorbenzol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methyl-ethyl-, Methyl-isopropyl- oder Methyl-isobutyl-ke-ton, Ester wie Essigsäuremethylester oder -ethylester, Nitrile wie z.B. Acetonitril oder Propionitril, Amide wie z.B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid und N-Methylpyrrolidon sowie Dimethylsulfoxid, Tetramethylensulfon oder Hexamethylenphosphorsäuretriamid.

Als Säureakzeptoren können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (b) alle üblicherweise für derartige Umsetzungen verwendbaren Säurebindemittel eingesetzt werden. Vorzugsweise infrage kommen Alkalimetall- und Erdalkalimetallhydride, wie Lithium, Natrium-, Kalium- oder Calciumhydrid, Alkalimetall- oder Erdalkalimetallhydroxide, wie Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calciumhydroxid, Alkalimetall- oder Erdalkalimetallcarbonate oder -hydrogencarbonate, wie Natrium- oder Kaliumcarbonate oder -hydrogencarbonat oder Calciumcarbonat, Alkalimetallacetate, wie Natrium- oder Kaliumacetat, Alkalimetallalkoholate, wie Natrium- oder Kalium-tert.-butylat, ferner basische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Diisobutylamin, Dicyclohexylamin, Ethyldiisopropylamin, Ethyldicyclohexylamin, N,N-Dimethylbenzylamin, N,N-Dimethyl-anilin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 2-Ethyl-, 4-Ethyl- und 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), 1,8-Diazabicyclo-[5,4,0]-undec-7-en (DBU) oder 1,4-Diazabicyclo-[2,2,2]-octan (DABCO).

Die Reaktionstemperaturen können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10°C und 80°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

5

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuss zu verwenden. Die Aufarbeitung erfolgt bei den erfindungsgemäßen Verfahren jeweils nach üblichen Methoden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

10

Bei der Herstellung von Verbindungen, in denen  $R^4$  für einen tertiären Alkylrest steht, erweist es sich in manchen Fällen als vorteilhaft die Verbindungen der Formel (Ia) bzw. der Formel (IIIa) mit tertiären Alkoholen in Gegenwart von starken Säuren, wie z.B. Trifluoressigsäure und/oder Schwefelsäure umzusetzen (vgl. auch die Herstellungsbeispiele).

15

Die Wirkstoffe eignen sich bei guter Pflanzenverträglichkeit und günstiger Warmblütertoxizität zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere Insekten, Spinnentieren und Nematoden, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie können vorzugsweise als Pflanzenschutzmittel eingesetzt werden. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

20

25

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. *Oniscus asellus*, *Armadillidium vulgare*, *Porcellio scaber*.

30

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. *Blaniulus guttulatus*.

Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. *Geophilus carpophagus*, *Scutigera* spp..

Aus der Ordnung der Symphyla z.B. *Scutigereilla immaculata*.

- 5 Aus der Ordnung der Thysanura z.B. *Lepisma saccharina*.

Aus der Ordnung der Collembola z.B. *Onychiurus armatus*.

- 10 Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. *Acheta domesticus*, *Gryllotalpa* spp., *Locusta migratoria migratorioides*, *Melanoplus* spp., *Schistocerca gregaria*.

Aus der Ordnung der Blattaria z.B. *Blatta orientalis*, *Periplaneta americana*, *Leucophaea maderae*, *Blattella germanica*.

- 15 Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. *Forficula auricularia*.

Aus der Ordnung der Isoptera z.B. *Reticulitermes* spp..

- 20 Aus der Ordnung der Phthiraptera z.B. *Pediculus humanus corporis*, *Haematopinus* spp., *Linognathus* spp., *Trichodectes* spp., *Damalinia* spp..

Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. *Hercinothrips femoralis*, *Thrips tabaci*, *Thrips palmi*, *Frankliniella accidentalis*.

- 25 Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Eurygaster* spp., *Dysdercus intermedius*, *Piesma quadrata*, *Cimex lectularius*, *Rhodnius prolixus*, *Triatoma* spp.

- 30 Aus der Ordnung der Homoptera z.B. *Aleurodes brassicae*, *Bemisia tabaci*, *Trialeurodes vaporariorum*, *Aphis gossypii*, *Brevicoryne brassicae*, *Cryptomyzus ribis*, *Aphis fabae*, *Aphis pomi*, *Eriosoma lanigerum*, *Hyalopterus arundinis*, *Phylloxera vastatrix*, *Pemphigus* spp., *Macrosiphum avenae*, *Myzus* spp., *Phorodon*

humuli, Rhopalosiphum padi, Empoasca spp., Euscelis bilobatus, Nephotettix cincticeps, Lecanium corni, Saissetia oleae, Laodelphax striatellus, Nilaparvata lugens, Aonidiella aurantii, Aspidiotus hederae, Pseudococcus spp., Psylla spp.

- 5 Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. Pectinophora gossypiella, Bupalus piniarius, Cheimatobia brumata, Lithocolletis blancardella, Hyponomeuta padella, Plutella xylostella, Malacosoma neustria, Euproctis chrysorrhoea, Lymantria spp., Bucculatrix thurberiella, Phyllocnistis citrella, Agrotis spp., Euxoa spp., Feltia spp., Earias insulana, Heliothis spp., Mamestra brassicae, Panolis flammea, Spodoptera
- 10 spp., Trichoplusia ni, Carpocapsa pomonella, Pieris spp., Chilo spp., Pyrausta nubilalis, Ephestia kuehniella, Galleria mellonella, Tineola bisselliella, Tinea pellionella, Hofmannophila pseudospretella, Cacoecia podana, Capua reticulana, Choristoneura fumiferana, Clysia ambiguella, Homona magnanima, Tortrix viridana, Cnaphalocerus spp., Oulema oryzae.

- 15 Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. Anobium punctatum, Rhizophorthera dominica, Bruchidius obtectus, Acanthoscelides obtectus, Hylotrupes bajulus, Agelastica alni, Leptinotarsa decemlineata, Phaedon cochleariae, Diabrotica spp., Psylliodes chrysocephala, Epilachna varivestis, Atomaria spp., Oryzaephilus surinamensis,
- 20 Anthonomus spp., Sitophilus spp., Otiorrhynchus sulcatus, Cosmopolites sordidus, Ceuthorrhynchus assimilis, Hypera postica, Dermestes spp., Trogoderma spp., Anthrenus spp., Attagenus spp., Lyctus spp., Meligethes aeneus, Ptinus spp., Niptus hololeucus, Gibbium psylloides, Tribolium spp., Tenebrio molitor, Agriotes spp., Conoderus spp., Melolontha melolontha, Amphimallon solstitialis, Costelytra
- 25 zealandica, Lissorhoptrus oryzophilus.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. Diprion spp., Hoplocampa spp., Lasius spp., Monomorium pharaonis, Vespa spp.

- 30 Aus der Ordnung der Diptera z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Drosophila melanogaster, Musca spp., Fannia spp., Calliphora erythrocephala,



Lucilia spp., Chrysomyia spp., Cuterebra spp., Gastrophilus spp., Hyppobosca spp., Stomoxys spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Tabanus spp., Tannia spp., Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomyia hyoscyami, Ceratitis capitata, Dacus oleae, Tipula paludosa, Hylemyia spp., Liriomyza spp..

5

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopis, Ceratophyllus spp..

10 Aus der Klasse der Arachnida z.B. Scorpio maurus, Latrodectus mactans, Acarus siro, Argas spp., Ornithodoros spp., Dermanyssus gallinae, Eriophyes ribis, Phyllocoptura oleivora, Boophilus spp., Rhipicephalus spp., Amblyomma spp., Hyalomma spp., Ixodes spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Sarcoptes spp., Tarsonemus spp., Bryobia praetiosa, Panonychus spp., Tetranychus spp., Hemitarsonemus spp., Brevipalpus spp..

15 Zu den pflanzenparasitären Nematoden gehören z.B. Pratylenchus spp., Radopholus similis, Ditylenchus dipsaci, Tylenchulus semipenetrans, Heterodera spp., Globodera spp., Meloidogyne spp., Aphelenchoides spp., Longidorus spp., Xiphinema spp., Trichodorus spp., Bursaphelenchus spp..

20 Die erfindungsgemäßen Stoffe lassen sich mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von pflanzenschädigenden Insekten, wie z.B. gegen Raupen des Baumwollkapselwurms (Heliothis virescens), die Larven des Meerrettichkäfers (Phaedon cochleariae), die Raupen der Kohlschabe (Plutella xylostella) sowie Raupen des Heerwurms (Spodoptera exigua und Spodoptera frugiperda) einsetzen.

25

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen bzw. Aufwandmengen auch als Herbizide und Mikrobizide, beispielsweise als Fungizide, Antimykotika und Bakterizide verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- oder Vorprodukte für die Synthese weiterer

30 Wirkstoffe einsetzen.

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaren oder nicht schützbaren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stengel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetic Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff "Teile" bzw. "Teile von Pflanzen" oder "Pflanzenteile" wurde oben erläutert.

Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit bestimmten Eigenschaften ("Traits"), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder durch rekombinante DNA-Techniken erhalten worden sind. Das können Sorten, Bio- oder Genotypen sein.

Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive ("synergistische") Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften ("Traits") verleiht. Beispiele für solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien

und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften ("Traits") werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus *Bacillus Thuringiensis* (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIIB2, Cry9c Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im folgenden "Bt Pflanzen"). Als Eigenschaften ("Traits") werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften ("Traits") werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, beispielsweise Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. "PAT"-Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften ("Traits") verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für "Bt Pflanzen" seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucotn® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle, Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zu-

künftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften ("Traits").

- 5 Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der Formel (I) behandelt werden. Die bei den Wirkstoffen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen.
- 10 Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.
- 15 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln.
- 20 Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe,
- 25 wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfractionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.
- 30 Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktio-

5 nierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-

10 Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Einweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche

15 und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

20 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-farbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

25 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Der erfindungsgemäße Wirkstoff kann in seinen handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung

30 mit anderen Wirkstoffen, wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbi-

ziden vorliegen. Zu den Insektiziden zählen beispielsweise Phosphorsäureester, Carbamate, Carbonsäureester, chlorierte Kohlenwasserstoffe, Phenylharnstoffe, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u.a.

5 Besonders günstige Mischpartner sind z.B. die folgenden:

**Fungizide:**

10 Aldimorph, Ampropylfos, Ampropylfos-Kalium, Andoprim, Anilazin, Azaconazol, Azoxystrobin,

Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Benzamacril, Benzamacryl-isobutyl, Bialaphos, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazol, Bupirimat, Buthiobat,

15 Calciumpolysulfid, Capsimycin, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Carvon, Chinomethionat (Quinomethionat), Chlobenthiazon, Chlorfenazol, Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Clozylacon, Cufraneb, Cymoxanil, Cyproconazol, Cyprodinil, Cyprofuram,

20 Debacarb, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, Difenconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Diniconazol-M, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithione, Ditalimfos, Dithianon, Dodemorph, Dodine, Drazoxolon,

25 Ediphenphos, Epoxiconazol, Etaconazol, Ethirimol, Etridiazol,

30 Famoxadon, Fenapanil, Fenarimol, Fenbuconazol, Fenfuram, Fenitropan, Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzon, Fluazinam, Flumetover, Fluoromid, Fluquinconazol, Flurprimidol, Flusilazol, Flusulfamid, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Aluminium, Fosetyl-

Natrium, Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol, Furconazol-cis, Furmecyclox,

Guazatin,

5

Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,

Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iminoctadinealbesilat, Iminoctadinetriacetat, Iodocarb, Ipconazol, Iprobenfos (IBP), Iprodione, Irumamycin, Isoprothiolan, Isovaledione,

10

Kasugamycin, Kresoxim-methyl, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung,

15

Mancopper, Mancozeb, Maneb, Meferimzone, Mepanipirim, Mepronil, Metalaxyl, Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metomeclam, Metsulfovax, Mildiomycin, Myclobutanil, Myclozolin,

20

Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol,

Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxolinicacid, Oxycarboxim, Oxyfenthiin,

25

Paclobutrazol, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin, Piperalin, Polyoxin, Polyoxorim, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propanosine-Natrium, Propiconazol, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenox, Pyrimethanil, Pyroquilon, Pyroxyfur,

Quinconazol, Quintozen (PCNB),

30

Schwefel und Schwefel-Zubereitungen,



Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetcyclacis, Tetraconazol, Thiabendazol,  
Thicyofen, Thifluzamide, Thiophanate-methyl, Thiram, Tioxymid, Tolclofos-methyl,  
Tolylfluamid, Triadimefon, Triadimenol, Triazbutil, Triazoxid, Trichlamid,  
5 Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol,

Uniconazol,

Validamycin A, Vinclozolin, Viniconazol,

10

Zarilamid, Zineb, Ziram sowie

Dagger G,

15 OK-8705,

OK-8801,

20

$\alpha$ -(1,1-Dimethylethyl)- $\beta$ -(2-phenoxyethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

$\alpha$ -(2,4-Dichlorphenyl)- $\beta$ -fluor-b-propyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

$\alpha$ -(2,4-Dichlorphenyl)- $\beta$ -methoxy-a-methyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

25  $\alpha$ -(5-Methyl-1,3-dioxan-5-yl)- $\beta$ -[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methylen]-1H-1,2,4-  
triazol-1-ethanol,

(5RS,6RS)-6-Hydroxy-2,2,7,7-tetramethyl-5-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-3-octanon,

30 (E)-a-(Methoxyimino)-N-methyl-2-phenoxy-phenylacetamid,

{2-Methyl-1-[[[1-(4-methylphenyl)-ethyl]-amino]-carbonyl]-propyl}-carbaminsäure-  
1-isopropylester

1-(2,4-Dichlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-ethanon-O-(phenylmethyl)-oxim,

1-(2-Methyl-1-naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion,

1-(3,5-Dichlorphenyl)-3-(2-propenyl)-2,5-pyrrolidindion,

1-[(Diiodmethyl)-sulfonyl]-4-methyl-benzol,

1-[[2-(2,4-Dichlorphenyl)-1,3-dioxolan-2-yl]-methyl]-1H-imidazol,

1-[[2-(4-Chlorphenyl)-3-phenyloxiranyl]-methyl]-1H-1,2,4-triazol,

1-[1-[2-[(2,4-Dichlorphenyl)-methoxy]-phenyl]-ethenyl]-1H-imidazol,

1-Methyl-5-nonyl-2-(phenylmethyl)-3-pyrrolidinol,

2',6'-Dibrom-2-methyl-4'-trifluormethoxy-4'-trifluor-methyl-1,3-thiazol-5-  
carboxanilid,

2,2-Dichlor-N-[1-(4-chlorphenyl)-ethyl]-1-ethyl-3-methyl-cyclopropancarboxamid,

2,6-Dichlor-5-(methylthio)-4-pyrimidinyl-thiocyanat,

2,6-Dichlor-N-(4-trifluormethylbenzyl)-benzamid,

2,6-Dichlor-N-[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methyl]-benzamid,

2-(2,3,3-Triiod-2-propenyl)-2H-tetrazol,

- 2-[(1-Methylethyl)-sulfonyl]-5-(trichlormethyl)-1,3,4-thiadiazol,
- 2-[[6-Deoxy-4-O-(4-O-methyl- $\beta$ -D-glycopyranosyl)- $\alpha$ -D-glucopyranosyl]-amino]-4-  
5 methoxy-1H-pyrrolo[2,3-d]pyrimidin-5-carbonitril,
- 2-Aminobutan,
- 2-Brom-2-(brommethyl)-pentandinitril,
- 10 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid,
- 2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(isothiocyantomethyl)-acetamid,
- 15 2-Phenylphenol(OPP),
- 3,4-Dichlor-1-[4-(difluormethoxy)-phenyl]-1H-pyrrol-2,5-dion,
- 3,5-Dichlor-N-[cyan[(1-methyl-2-propynyl)-oxy]-methyl]-benzamid,
- 20 3-(1,1-Dimethylpropyl-1-oxo-1H-inden-2-carbonitril,
- 3-[2-(4-Chlorphenyl)-5-ethoxy-3-isoxazolidinyl]-pyridin,
- 25 4-Chlor-2-cyan-N,N-dimethyl-5-(4-methylphenyl)-1H-imidazol-1-sulfonamid,
- 4-Methyl-tetrazolo[1,5-a]quinazolin-5(4H)-on,
- 8-(1,1-Dimethylethyl)-N-ethyl-N-propyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan-2-methanamin,
- 30 8-Hydroxychinolinsulfat,

- 9H-Xanthen-9-carbonsäure-2-[(phenylamino)-carbonyl]-hydrazid,
- bis-(1-Methylethyl)-3-methyl-4-[(3-methylbenzoyl)-oxy]-2,5-thiophendicarboxylat,
- 5 cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol,
- cis-4-[3-[4-(1,1-Dimethylpropyl)-phenyl-2-methylpropyl]-2,6-dimethyl-morpholin-
- hydrochlorid,
- 10 Ethyl-[(4-chlorphenyl)-azo]-cyanoacetat,
- Kaliumhydrogencarbonat,
- 15 Methantetrathiol-Natriumsalz,
- Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat,
- Methyl-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(5-isoxazolylcarbonyl)-DL-alaninat,
- 20 Methyl-N-(chloracetyl)-N-(2,6-dimethylphenyl)-DL-alaninat,
- N-(2,3-Dichlor-4-hydroxyphenyl)-1-methyl-cyclohexancarboxamid.
- 25 N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-furanyl)-acetamid,
- N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-thienyl)-acetamid,
- N-(2-Chlor-4-nitrophenyl)-4-methyl-3-nitro-benzolsulfonamid,
- 30 N-(4-Cyclohexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,

N-(4-Hexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,

N-(5-Chlor-2-methylphenyl)-2-methoxy-N-(2-oxo-3-oxazolidinyl)-acetamid,

5

N-(6-Methoxy)-3-pyridinyl)-cyclopropanecarboxamid,

N-[2,2,2-Trichlor-1-[(chloracetyl)-amino]-ethyl]-benzamid,

10

N-[3-Chlor-4,5-bis-(2-propinyloxy)-phenyl]-N'-methoxy-methanimidamid,

N-Formyl-N-hydroxy-DL-alanin -Natriumsalz,

O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat,

15

O-Methyl-S-phenyl-phenylpropylphosphoramidothioate,

S-Methyl-1,2,3-benzothiadiazol-7-carbothioat,

20

spiro[2H]-1-Benzopyran-2,1'(3'H)-isobenzofuran]-3'-on,

**Bakterizide:**

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-Dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin,

25

Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

**Insektizide / Akarizide / Nematizide:**

- Abamectin, Acephate, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb,  
Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin,  
5 Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,
- Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis,  
Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb,  
Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin,  
10 Biopermethrin, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocar-  
boxim, Butylpyridaben,
- Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloetho-  
carb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos,  
15 Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaporthrin, Cis-Resmethrin, Cispermethrin,  
Clocythrín, Cloethocarb, Clofentezine, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin,  
Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazine,
- Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon,  
20 Dichlorvos, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos, Diofenolan, Disulfoton,  
Docusat-sodium, Dofenapyn,
- Eflusilanate, Enamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopffhora spp.,  
Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos,  
25
- Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim,  
Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate,  
Fipronil, Fluazinam, Fluazuron, Flubrocycythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate,  
Flufenoxuron, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate,  
30 Fubfenprox, Furathiocarb,

Granuloseviren

Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene,

5 Imidacloprid, Isazofos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,

Kernpolyederviren

Lambda-cyhalothrin, Lufenuron

10

Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae, Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Monocrotophos,

15 Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron

Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M

20 Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat, Phorat, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A, Pirimiphos M, Profenofos, Promecarb, Propoxur, Prothiofos, Prothoat, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxyfen,

25 Quinalphos,

Ribavirin

Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Sulfotep, Sulprofos,

30

Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temiviphos, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Theta-cypermethrin, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thuringiensin, Tralocyrthrin, Tralomethrin, Triarathene, Tri-  
5 azamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii

10 YI 5302

Zeta-cypermethrin, Zolaprofos

(1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-  
15 furanylidene)-methyl]-2,2-dimethylcyclopropanecarboxylat

(3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat

1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-2(1H)-  
20 imin

2-(2-Chlor-6-fluorophenyl)-4-[4-(1,1-dimethylethyl)phenyl]-4,5-dihydro-oxazol

2-(Acetyloxy)-3-dodecyl-1,4-naphthalindion

25

2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid

2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid

30 3-Methylphenyl-propylcarbamate



- 4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol
- 4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-  
3(2H)-pyridazinon
- 5 4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)methoxy]-3(2H)-  
pyridazinon
- 4-Chlor-5-[(6-chlor-3-pyridinyl)methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon
- 10 Bacillus thuringiensis strain EG-2348
- Benzoessäure [2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid]
- 15 Butansäure 2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-  
ester
- [3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid
- 20 Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd
- Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbamat
- N-(3,4,4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin
- 25 N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-(difluormethoxy)phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-  
1-carboxamid
- N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N''-nitro-guanidin
- 30 N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid

N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid

O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat

5

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

10

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können ferner beim Einsatz als Insektizide in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindungen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert wird, ohne dass der zugesetzte Synergist selbst aktiv wirksam sein muss.

15

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% liegen.

20

Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepassten üblichen Weise.

25

Bei der Anwendung gegen Hygiene- und Vorratsschädlinge zeichnet sich der Wirkstoff durch eine hervorragende Residualwirkung auf Holz und Ton sowie durch eine gute Alkalistabilität auf gekalkten Unterlagen aus.

30

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe wirken nicht nur gegen Pflanzen-, Hygiene- und Vorratsschädlinge, sondern auch auf dem veterinärmedizinischen Sektor gegen tierische Parasiten (Ektoparasiten) wie Schildzecken, Lederzecken, Räudemilben, Laufmilben, Fliegen (stechend und leckend), parasitierende Fliegenlarven, Läuse, Haarlinge, Federlinge und Flöhe. Zu diesen Parasiten gehören:

Aus der Ordnung der Anoplurida z.B. Haematopinus spp., Linognathus spp., Pediculus spp., Phtirus spp., Solenopotes spp..

- 5 Aus der Ordnung der Mallophagida und den Unterordnungen Amblycerina sowie Ischnocerina z.B. Trimenopon spp., Menopon spp., Trinoton spp., Bovicola spp., Werneckiella spp., Lepikentron spp., Damalina spp., Trichodectes spp., Felicola spp..

- 10 Aus der Ordnung Diptera und den Unterordnungen Nematocerina sowie Brachycerina z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Simulium spp., Eusimulium spp., Phlebotomus spp., Lutzomyia spp., Culicoides spp., Chrysops spp., Hybomitra spp., Atylotus spp., Tabanus spp., Haematopota spp., Philipomyia spp., Braula spp., Musca spp., Hydrotaea spp., Stomoxys spp., Haematobia spp., Morellia spp., Fannia spp., Glossina spp., Calliphora spp., Lucilia spp., Chrysomyia spp.,  
15 Wohlfahrtia spp., Sarcophaga spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Gasterophilus spp., Hippobosca spp., Lipoptena spp., Melophagus spp..

- Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Pulex spp., Ctenocephalides spp., Xenopsylla spp., Ceratophyllus spp..  
20 Aus der Ordnung der Heteropterida z.B. Cimex spp., Triatoma spp., Rhodnius spp., Panstrongylus spp..

- Aus der Ordnung der Blattarida z.B. Blatta orientalis, Periplaneta americana, Blattella germanica, Supella spp..  
25

- Aus der Unterklasse der Acaria (Acarida) und den Ordnungen der Meta- sowie Mesostigmata z.B. Argas spp., Ornithodoros spp., Otobius spp., Ixodes spp., Amblyomma spp., Boophilus spp., Dermacentor spp., Haemophysalis spp.,  
30 Hyalomma spp., Rhipicephalus spp., Dermanyssus spp., Raillietia spp., Pneumonyssus spp., Sternostoma spp., Varroa spp..

Aus der Ordnung der Actinedida (Prostigmata) und Acaridida (Astigmata) z.B. Acarapis spp., Cheyletiella spp., Ornithocheyletia spp., Myobia spp., Psorergates spp., Demodex spp., Trombicula spp., Listrophorus spp., Acarus spp., Tyrophagus spp., Caloglyphus spp., Hypodectes spp., Pterolichus spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Otodectes spp., Sarcoptes spp., Notoedres spp., Knemidocoptes spp., Cytodites spp., Laminosioptes spp..

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formel (I) eignen sich auch zur Bekämpfung von Arthropoden, die landwirtschaftliche Nutztiere, wie z.B. Rinder, Schafe, Ziegen, Pferde, Schweine, Esel, Kamele, Büffel, Kaninchen, Hühner, Puten, Enten, Gänse, Bienen, sonstige Haustiere wie z.B. Hunde, Katzen, Stubenvögel, Aquarienfische sowie sogenannte Versuchstiere, wie z.B. Hamster, Meerschweinchen, Ratten und Mäuse befallen. Durch die Bekämpfung dieser Arthropoden sollen Todesfälle und Leistungsminderungen (bei Fleisch, Milch, Wolle, Häuten, Eiern, Honig usw.) vermindert werden, so dass durch den Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe eine wirtschaftlichere und einfachere Tierhaltung möglich ist.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geschieht im Veterinärsektor in bekannter Weise durch enterale Verabreichung in Form von beispielsweise Tabletten, Kapseln, Tränken, Drenchen, Granulaten, Pasten, Boli, des feed-through-Verfahrens, von Zäpfchen, durch parenterale Verabreichung, wie zum Beispiel durch Injektionen (intramuskulär, subcutan, intravenös, intraperitoneal u.a.), Implantate, durch nasale Applikation, durch dermale Anwendung in Form beispielsweise des Tauchens oder Badens (Dippen), Sprühens (Spray), Aufgießens (Pour-on und Spot-on), des Waschens, des Einpuderns sowie mit Hilfe von wirkstoffhaltigen Formkörpern, wie Halsbändern, Ohrmarken, Schwanzmarken, Gliedmaßenbändern, Halftern, Markierungsvorrichtungen usw.

Bei der Anwendung für Vieh, Geflügel, Haustiere etc. kann man die Wirkstoffe der Formel (I) als Formulierungen (beispielsweise Pulver, Emulsionen, fließfähige Mit-

tel), die die Wirkstoffe in einer Menge von 1 bis 80 Gew.-% enthalten, direkt oder nach 100 bis 10 000-facher Verdünnung anwenden oder sie als chemisches Bad verwenden.

- 5      Außerdem wurde gefunden, dass die erfindungsgemäßen Verbindungen eine hohe insektizide Wirkung gegen Insekten zeigen, die technische Materialien zerstören.

Beispielhaft und vorzugsweise - ohne jedoch zu limitieren - seien die folgenden Insekten genannt:

10

Käfer wie

15

Hylotrupes bajulus, Chlorophorus pilosis, Anobium punctatum, Xestobium rufovillosum, Ptilinus pecticornis, Dendrobium pertinex, Ernobius mollis, Priobium carpini, Lyctus brunneus, Lyctus africanus, Lyctus planicollis, Lyctus linearis, Lyctus pubescens, Trogoxylon aequale, Minthes rugicollis, Xyleborus spec. Tryptodendron spec. Apate monachus, Bostrychus capucins, Heterobostrychus brunneus, Sinoxylon spec. Dinoderus minutus.

20

Hautflügler wie

Sirex juvencus, Urocerus gigas, Urocerus gigas taignus, Urocerus augur.

Termiten wie

25

Kaloterme flavicollis, Cryptoterme brevis, Heteroterme indicola, Reticuliterme flavipes, Reticuliterme santonensis, Reticuliterme lucifugus, Mastoterme darwiniensis, Zootermopsis nevadensis, Coptoterme formosanus.

Borstenschwänze wie Lepisma saccharina.

30

Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nicht-lebende Materialien zu verstehen, wie vorzugsweise Kunststoffe, Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Holzverarbeitungsprodukte und Anstrichmittel.

- 5 Ganz besonders bevorzugt handelt es sich bei dem vor Insektenbefall zu schützenden Material um Holz und Holzverarbeitungsprodukte.

Unter Holz und Holzverarbeitungsprodukten, welche durch das erfindungsgemäße Mittel bzw. dieses enthaltende Mischungen geschützt werden kann, ist beispielhaft  
10 zu verstehen:

Bauholz, Holzbalken, Eisenbahnschwellen, Brückenteile, Bootsstege, Holzfahrzeuge, Kisten, Paletten, Container, Telefonmasten, Holzverkleidungen, Holzfenster und -türen, Sperrholz, Spanplatten, Tischlerarbeiten oder Holzprodukte, die ganz allge-  
15 mein beim Hausbau oder in der Bautischlerei Verwendung finden.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form von Konzentraten oder allgemein üblichen Formulierungen wie Pulver, Granulate, Lösungen, Suspensionen, Emulsionen oder Pasten angewendet werden.

20 Die genannten Formulierungen können in an sich bekannter Weise hergestellt werden, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit mindestens einem Lösungs- bzw. Verdünnungsmittel, Emulgator, Dispergier- und/oder Binde- oder Fixiermittels, Wasser-Repellent, gegebenenfalls Sikkative und UV-Stabilisatoren und gegebenen-  
25 falls Farbstoffen und Pigmenten sowie weiteren Verarbeitungshilfsmitteln.

Die zum Schutz von Holz und Holzwerkstoffen verwendeten insektiziden Mittel oder Konzentrate enthalten den erfindungsgemäßen Wirkstoff in einer Konzentration von 0,0001 bis 95 Gew.-%, insbesondere 0,001 bis 60 Gew.-%.

30

Die Menge der eingesetzten Mittel bzw. Konzentrate ist von der Art und dem Vorkommen der Insekten und von dem Medium abhängig. Die optimale Einsatzmenge kann bei der Anwendung jeweils durch Testreihen ermittelt werden. Im allgemeinen ist es jedoch ausreichend 0,0001 bis 20 Gew.-%, vorzugsweise 0,001 bis 10 Gew.-%, des Wirkstoffs, bezogen auf das zu schützende Material, einzusetzen.

Als Lösungs- und/oder Verdünnungsmittel dient ein organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch und/oder ein öliges oder öartiges schwer flüchtiges organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch und/oder ein polares organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch und/oder Wasser und gegebenenfalls einen Emulgator und/oder Netzmittel.

Als organisch-chemische Lösungsmittel werden vorzugsweise ölige oder öartige Lösungsmittel mit einer Verdunstungszahl über 35 und einem Flammpunkt oberhalb 30°C, vorzugsweise oberhalb 45°C, eingesetzt. Als derartige schwerflüchtige, wasserunlösliche, ölige und öartige Lösungsmittel werden entsprechende Mineralöle oder deren Aromatenfraktionen oder mineralölhaltige Lösungsmittelgemische, vorzugsweise Testbenzin, Petroleum und/oder Alkylbenzol verwendet.

Vorteilhaft gelangen Mineralöle mit einem Siedebereich von 170 bis 220°C, Testbenzin mit einem Siedebereich von 170 bis 220°C, Spindelöl mit einem Siedebereich von 250 bis 350°C, Petroleum bzw. Aromaten vom Siedebereich von 160 bis 280°C, Terpentinöl und dgl. zum Einsatz.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden flüssige aliphatische Kohlenwasserstoffe mit einem Siedebereich von 180 bis 210°C oder hochsiedende Gemische von aromatischen und aliphatischen Kohlenwasserstoffen mit einem Siedebereich von 180 bis 220°C und/oder Spindelöl und/oder Monochlornaphthalin, vorzugsweise  $\alpha$ -Monochlornaphthalin, verwendet.

Die organischen schwerflüchtigen öligen oder ölartigen Lösungsmittel mit einer Verdunstungszahl über 35 und einem Flammpunkt oberhalb 30°C, vorzugsweise oberhalb 45°C, können teilweise durch leicht oder mittelflüchtige organisch-chemische Lösungsmittel ersetzt werden, mit der Maßgabe, dass das Lösungsmittelgemisch  
5 ebenfalls eine Verdunstungszahl über 35 und einen Flammpunkt oberhalb 30°C, vorzugsweise oberhalb 45°C, aufweist und dass das Insektizid-Fungizid-Gemisch in diesem Lösungsmittelgemisch löslich oder emulgierbar ist.

Nach einer bevorzugten Ausführungsform wird ein Teil des organisch-chemischen  
10 Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisches oder ein aliphatisches polares organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch ersetzt. Vorzugsweise gelangen Hydroxyl- und/oder Ester- und/oder Ethergruppen enthaltende aliphatische organisch-chemische Lösungsmittel wie beispielsweise Glycolether, Ester oder dgl.  
zur Anwendung.

15 Als organisch-chemische Bindemittel werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung die an sich bekannten wasserverdünnbaren und/oder in den eingesetzten organisch-chemischen Lösungsmitteln löslichen oder dispergier- bzw. emulgierbaren Kunstharze und/oder bindende trocknende Öle, insbesondere Bindemittel bestehend  
20 aus oder enthaltend ein Acrylatharz, ein Vinylharz, z.B. Polyvinylacetat, Polyesterharz, Polykondensations- oder Polyadditionsharz, Polyurethanharz, Alkydharz bzw. modifiziertes Alkydharz, Phenolharz, Kohlenwasserstoffharz wie Inden-Cumaronharz, Siliconharz, trocknende pflanzliche und/oder trocknende Öle und/oder physikalisch trocknende Bindemittel auf der Basis eines Natur- und/oder Kunstharzes verwendet.  
25

Das als Bindemittel verwendete Kunstharz kann in Form einer Emulsion, Dispersion oder Lösung, eingesetzt werden. Als Bindemittel können auch Bitumen oder bituminöse Substanzen bis zu 10 Gew.-%, verwendet werden. Zusätzlich können an sich  
30 bekannte Farbstoffe, Pigmente, wasserabweisende Mittel, Geruchskorrigentien und Inhibitoren bzw. Korrosionsschutzmittel und dgl. eingesetzt werden.



Bevorzugt ist gemäß der Erfindung als organisch-chemische Bindemittel mindestens ein Alkydharz bzw. modifiziertes Alkydharz und/oder ein trocknendes pflanzliches Öl im Mittel oder im Konzentrat enthalten. Bevorzugt werden gemäß der Erfindung

5 Alkydharze mit einem Ölgehalt von mehr als 45 Gew.-%, vorzugsweise 50 bis 68 Gew.-%, verwendet.

Das erwähnte Bindemittel kann ganz oder teilweise durch ein Fixierungsmittel(gemisch) oder ein Weichmacher(gemisch) ersetzt werden. Diese Zusätze sollen

10 einer Verflüchtigung der Wirkstoffe sowie einer Kristallisation bzw. Ausfällen vorbeugen. Vorzugsweise ersetzen sie 0,01 bis 30 % des Bindemittels (bezogen auf 100 % des eingesetzten Bindemittels).

Die Weichmacher stammen aus den chemischen Klassen der Phthalsäureester wie

15 Dibutyl-, Dioctyl- oder Benzylbutylphthalat, Phosphorsäureester wie Tributylphosphat, Adipinsäureester wie Di-(2-ethylhexyl)-adipat, Stearate wie Butylstearat oder Amylstearat, Oleate wie Butyloleat, Glycerinether oder höhermolekulare Glykolether, Glycerinester sowie p-Toluolsulfonsäureester.

20 Fixierungsmittel basieren chemisch auf Polyvinylalkylethern wie z.B. Polyvinylmethylether oder Ketonen wie Benzophenon, Ethylenbenzophenon.

Als Lösungs- bzw. Verdünnungsmittel kommt insbesondere auch Wasser in Frage, gegebenenfalls in Mischung mit einem oder mehreren der oben genannten organisch-

25 chemischen Lösungs- bzw. Verdünnungsmittel, Emulgatoren und Dispergatoren.

Ein besonders effektiver Holzschutz wird durch großtechnische Imprägnierverfahren, z.B. Vakuum, Doppelvakuum oder Druckverfahren, erzielt.

30 Die anwendungsfertigen Mittel können gegebenenfalls noch weitere Insektizide und gegebenenfalls noch ein oder mehrere Fungizide enthalten.

Als zusätzliche Zumischpartner kommen vorzugsweise die in der WO 94/29 268 genannten Insektizide und Fungizide in Frage. Die in diesem Dokument genannten Verbindungen sind ausdrücklicher Bestandteil der vorliegenden Anmeldung.

5

Als ganz besonders bevorzugte Zumischpartner können Insektizide, wie Chlorpyrifos, Phoxim, Silafluofin, Alphamethrin, Cyfluthrin, Cypermethrin, Deltamethrin, Permethrin, Imidacloprid, NI-25, Flufenoxuron, Hexaflumuron, Transfluthrin, Thiacloprid, Methoxyphenoxid und Triflumuron,

10

sowie Fungizide wie Epoxyconazole, Hexaconazole, Azaconazole, Propiconazole, Tebuconazole, Cyproconazole, Metconazole, Imazalil, Dichlorfluanid, Tolyfluanid, 3-Iod-2-propinyl-butylcarbamate, N-Octyl-isothiazolin-3-on und 4,5-Dichlor-N-octylisothiazolin-3-on, sein.

15

Zugleich können die erfindungsgemäßen Verbindungen zum Schutz vor Bewuchs von Gegenständen, insbesondere von Schiffskörpern, Sieben, Netzen, Bauwerken, Kaianlagen und Signalanlagen, welche mit See- oder Brackwasser in Verbindung kommen, eingesetzt werden.

20

Bewuchs durch sessile Oligochaeten, wie Kalkröhrenwürmer sowie durch Muscheln und Arten der Gruppe Ledamorpha (Entenmuscheln), wie verschiedene Lepas- und Scalpellum-Arten, oder durch Arten der Gruppe Balanomorpha (Seepocken), wie Balanus- oder Pollicipes-Species, erhöht den Reibungswiderstand von Schiffen und führt in der Folge durch erhöhten Energieverbrauch und darüber hinaus durch häufige Trockendockaufenthalte zu einer deutlichen Steigerung der Betriebskosten.

25

Neben dem Bewuchs durch Algen, beispielsweise Ectocarpus sp. und Ceramium sp., kommt insbesondere dem Bewuchs durch sessile Entomostraken-Gruppen, welche unter dem Namen Cirripedia (Rankenflussekrebse) zusammengefasst werden, besondere Bedeutung zu.

30

Es wurde nun überraschenderweise gefunden, dass die erfindungsgemäßen Verbindungen allein oder in Kombination mit anderen Wirkstoffen, eine hervorragende Antifouling (Antibewuchs)-Wirkung aufweisen.

5

Durch Einsatz von erfindungsgemäßen Verbindungen allein oder in Kombination mit anderen Wirkstoffen, kann auf den Einsatz von Schwermetallen wie z.B. in Bis(tri-alkylzinn)-sulfiden, Tri-*n*-butylzinnlaurat, Tri-*n*-butylzinncchlorid, Kupfer(I)-oxid, Triethylzinncchlorid, Tri-*n*-butyl(2-phenyl-4-chlorphenoxy)-zinn, Tributylzinnoxid, 10 Molybdändisulfid, Antimonoxid, polymerem Butyltitanat, Phenyl-(bispyridin)-wismutchlorid, Tri-*n*-butylzinncfluorid, Manganethylenbisthiocarbamat, Zinkdimethyldithiocarbamat, Zinkethylenbisthiocarbamat, Zink- und Kupfersalze von 2-Pyridinthiol-1-oxid, Bisdimethyldithiocarbamoylzinkethylenbisthiocarbamat, Zinkoxid, Kupfer(I)-ethylen-bisdithiocarbamat, Kupferthiocyanat, Kupfernaphtthenat und 15 Tributylzinnchalogeniden verzichtet werden oder die Konzentration dieser Verbindungen entscheidend reduziert werden.

Die anwendungsfertigen Antifoulingfarben können gegebenenfalls noch andere Wirkstoffe, vorzugsweise Algizide, Fungizide, Herbizide, Molluskizide bzw. andere 20 Antifouling-Wirkstoffe enthalten.

Als Kombinationspartner für die erfindungsgemäßen Antifouling-Mittel eignen sich vorzugsweise:

25 Algizide wie

2-*tert*.-Butylamino-4-cyclopropylamino-6-methylthio-1,3,5-triazin, Dichlorophen, Diuron, Endothal, Fentinacetat, Isoproturon, Methabenzthiazuron, Oxyfluorfen, Quinoclamine und Terbutryn;

30

Fungizide wie

Benzo[*b*]thiophencarbonsäurecyclohexylamid-S,S-dioxid, Dichlofluanid, Fluorfolpet, 3-Iod-2-propinyl-butylcarbammat, Tolyfluanid und Azole wie

- 5      Azaconazole, Cyproconazole, Epoxyconazole, Hexaconazole, Metconazole, Propiconazole und Tebuconazole;

Molluskizide wie

- 10     Fentinacetat, Metaldehyd, Methiocarb, Niclosamid, Thiodicarb und Trimethacarb; oder herkömmliche Antifouling-Wirkstoffe wie

- 15     4,5-Dichlor-2-octyl-4-isothiazolin-3-on, Diiodmethylparatrylsulfon, 2-(N,N-Dimethylthiocarbamoylthio)-5-nitrothiazyl, Kalium-, Kupfer-, Natrium- und Zinksalze von 2-Pyridinthiol-1-oxid, Pyridin-triphenylboran, Tetrabutyl-distannoxan, 2,3,5,6-Tetrachlor-4-(methylsulfonyl)-pyridin, 2,4,5,6-Tetrachloroisophthalonitril, Tetramethylthiuramdisulfid und 2,4,6-Trichlorphenylmaleinimid.

- 20     Die verwendeten Antifouling-Mittel enthalten die erfindungsgemäßen Wirkstoff der erfindungsgemäßen Verbindungen in einer Konzentration von 0,001 bis 50 Gew.-%, insbesondere von 0,01 bis 20 Gew.-%.

- 25     Die erfindungsgemäßen Antifouling-Mittel enthalten desweiteren die üblichen Bestandteile wie z.B. in Ungerer, *Chem. Ind.* **1985**, 37, 730-732 und Williams, *Antifouling Marine Coatings*, Noyes, Park Ridge, **1973** beschrieben.

Antifouling-Anstrichmittel enthalten neben den algiziden, fungiziden, molluskiziden und erfindungsgemäßen insektiziden Wirkstoffen insbesondere Bindemittel.

- 30     Beispiele für anerkannte Bindemittel sind Polyvinylchlorid in einem Lösungsmittelsystem, chlorierter Kautschuk in einem Lösungsmittelsystem, Acrylharze in einem

Lösungsmittelsystem insbesondere in einem wässrigen System, Vinylchlorid/Vinylacetat-Copolymersysteme in Form wässriger Dispersionen oder in Form von organischen Lösungsmittelsystemen, Butadien/Styrol/Acrylnitril-Kautschuke, trocknende Öle, wie Leinsamenöl, Harzester oder modifizierte Hartharze in Kombination mit Teer oder Bitumina, Asphalt sowie Epoxyverbindungen, geringe Mengen Chlorkautschuk, chloriertes Polypropylen und Vinylharze.

Gegebenenfalls enthalten Anstrichmittel auch anorganische Pigmente, organische Pigmente oder Farbstoffe, welche vorzugsweise in Seewasser unlöslich sind. Ferner können Anstrichmittel Materialien, wie Kolophonium enthalten, um eine gesteuerte Freisetzung der Wirkstoffe zu ermöglichen. Die Anstriche können ferner Weichmacher, die rheologischen Eigenschaften beeinflussende Modifizierungsmittel sowie andere herkömmliche Bestandteile enthalten. Auch in Self-Polishing-Antifouling-Systemen können die erfindungsgemäßen Verbindungen oder die oben genannten Mischungen eingearbeitet werden.

Die Wirkstoffe eignen sich auch zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere von Insekten, Spinnentieren und Milben, die in geschlossenen Räumen, wie beispielsweise Wohnungen, Fabrikhallen, Büros, Fahrzeugkabinen u.ä. vorkommen. Sie können zur Bekämpfung dieser Schädlinge allein oder in Kombination mit anderen Wirk- und Hilfsstoffen in Haushaltsinsektizid-Produkten verwendet werden. Sie sind gegen sensible und resistente Arten sowie gegen alle Entwicklungsstadien wirksam. Zu diesen Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Scorpionidea z.B. *Buthus occitanus*.

Aus der Ordnung der Acarina z.B. *Argas persicus*, *Argas reflexus*, *Bryobia* ssp., *Dermanyssus gallinae*, *Glyciphagus domesticus*, *Ornithodoros moubat*, *Rhipicephalus sanguineus*, *Trombicula alfreddugesi*, *Neutrombicula autumnalis*, *Dermatophagoides pteronissimus*, *Dermatophagoides forinae*.

Aus der Ordnung der Araneae z.B. Aviculariidae, Araneidae.

Aus der Ordnung der Opiliones z.B. Pseudoscorpiones chelifer, Pseudoscorpiones cheiridium, Opiliones phalangium.

5

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. Oniscus asellus, Porcellio scaber.

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. Blaniulus guttulatus, Polydesmus spp..

10

Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. Geophilus spp..

Aus der Ordnung der Zygentoma z.B. Ctenolepisma spp., Lepisma saccharina, Lepismodes inquilinus.

15

Aus der Ordnung der Blattaria z.B. Blatta orientalis, Blattella germanica, Blattella asahinai, Leucophaea maderae, Panchlora spp., Parcoblatta spp., Periplaneta australasiae, Periplaneta americana, Periplaneta brunnea, Periplaneta fuliginosa, Supella longipalpa.

20

Aus der Ordnung der Saltatoria z.B. Acheta domesticus.

Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. Forficula auricularia.

Aus der Ordnung der Isoptera z.B. Kalotermea spp., Reticulitermes spp.

25

Aus der Ordnung der Psocoptera z.B. Lepinatus spp., Liposcelis spp.

Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. Anthrenus spp., Attagenus spp., Dermestes spp., Latheticus oryzae, Necrobia spp., Ptinus spp., Rhizopertha dominica, Sitophilus granarius, Sitophilus oryzae, Sitophilus zeamais, Stegobium paniceum.

30

5 Aus der Ordnung der Diptera z.B. *Aedes aegypti*, *Aedes albopictus*, *Aedes taeniorhynchus*, *Anopheles* spp., *Calliphora erythrocephala*, *Chrysozona pluvialis*, *Culex quinquefasciatus*, *Culex pipiens*, *Culex tarsalis*, *Drosophila* spp., *Fannia canicularis*, *Musca domestica*, *Phlebotomus* spp., *Sarcophaga carnaria*, *Simulium* spp., *Stomoxys calcitrans*, *Tipula paludosa*.

Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. *Achroia grisella*, *Galleria mellonella*, *Plodia interpunctella*, *Tinea cloacella*, *Tinea pellionella*, *Tineola bisselliella*.

10 Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. *Ctenocephalides canis*, *Ctenocephalides felis*, *Pulex irritans*, *Tunga penetrans*, *Xenopsylla cheopis*.

15 Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. *Camponotus herculeanus*, *Lasius fuliginosus*, *Lasius niger*, *Lasius umbratus*, *Monomorium pharaonis*, *Paravespula* spp., *Tetramorium caespitum*.

Aus der Ordnung der Anoplura z.B. *Pediculus humanus capitis*, *Pediculus humanus corporis*, *Phthirus pubis*.

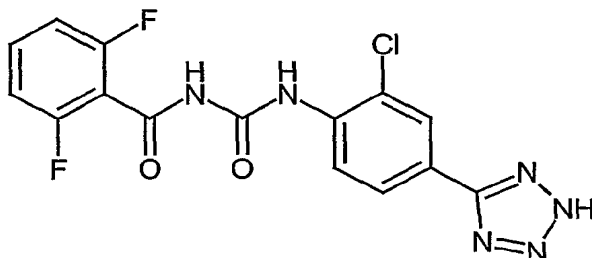
20 Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Cimex hemipterus*, *Cimex lectularius*, *Rhodinus prolixus*, *Triatoma infestans*.

25 Die Anwendung im Bereich der Haushaltsinsektizide erfolgt allein oder in Kombination mit anderen geeigneten Wirkstoffen wie Phosphorsäureestern, Carbamaten, Pyrethroiden, Wachstumsregulatoren oder Wirkstoffen aus anderen bekannten Insektizidklassen.

30 Die Anwendung erfolgt in Aerosolen, drucklosen Sprühmitteln, z.B. Pump- und Zerstäubersprays, Nebelautomaten, Foggern, Schäumen, Gelen, Verdampferprodukten mit Verdampferplättchen aus Cellulose oder Kunststoff, Flüssigverdampfern, Gel- und Membranverdampfern, propellergetriebenen Verdampfern, energielosen bzw.

passiven Verdampfungssystemen, Mottenpapieren, Mottensäckchen und Mottengelen, als Granulate oder Stäube, in Streuködem oder Köderstationen.



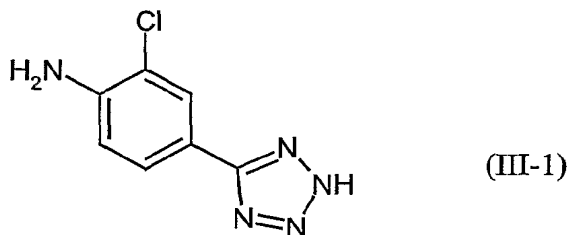
**Herstellungsbeispiele:****Beispiel:**

5 (Verfahren a)

Zu einer Lösung von 1 g (5,5 mMol) 5-(3-Chlor-4-aminophenyl)-tetrazol in 30 ml Acetonitril tropft man bei Raumtemperatur eine Lösung von 0,95 g (5,5 mMol) 2,6-Difluorbenzoylisocyanat in 20 ml Acetonitril. Das ausgefallene Produkt wird  
 10 abgesaugt und mit Acetonitril nachgewaschen.

Man erhält so 1,1 g (53 % der Theorie) N-(2,6-Difluorbenzoyl)-N'-(2-chlor-4-tetrazol-5-yl-phenyl)-harnstoff mit einem logP(pH2) von 2,13.

15 **Herstellung des Ausgangsproduktes:**

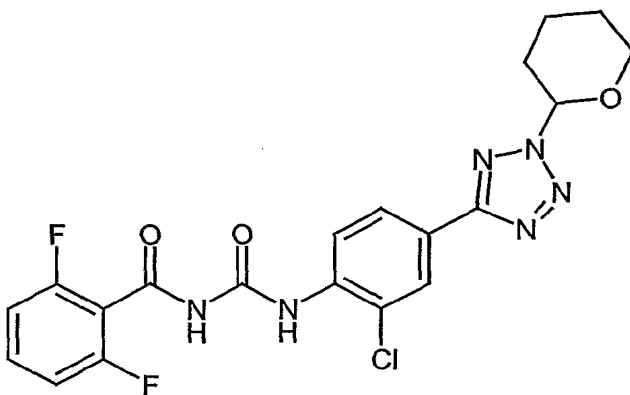


Eine Mischung aus 5 g (0,033 Mol) 3-Chlor-4-aminobenzonitril, 2,9 g (0,045 Mol) Natriumazid, 6,2 g (0,045 Mol) Triethylamin-Hydrochlorid und 80 ml Dimethylformamid wird 24 Stunden auf 120 bis 130°C erwärmt. Dann destilliert man das Lösungsmittel im Vakuum ab, löst den Rückstand in verdünnter Natronlauge und säuert  
 20

die Lösung mit verdünnter Salzsäure an. Das ausgefallene Produkt wird abgesaugt und mit Wasser nachgewaschen.

Man erhält so 6,2 g (96 % der Theorie) 5-(3-Chlor-4-aminophenyl)-tetrazol mit  
5 einem logP(pH2) von 1,00.

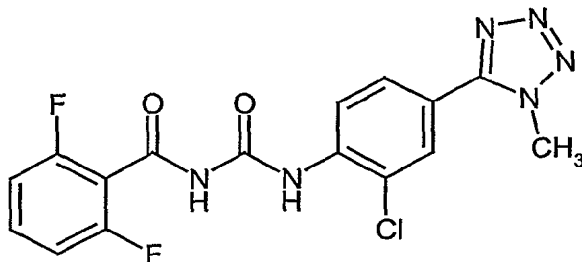
**Beispiel 2:**



10

(Verfahren b)

Eine Mischung aus 0,5 g (1,3 mMol) N-(2,6-Dichlorbenzoyl)-N'-(2-chlor-4-tetrazol-  
5-yl-phenyl)-harnstoff [Bsp. 1], 0,53 ml 3,4-Dihydro-2H-pyran und ca. 20-30 mg p-  
15 Toluolsulfonsäure in 20 ml Methylchlorid wird über Nacht bei Raumtemperatur ge-  
rührt. Dann schüttelt man das Reaktionsgemisch mit 20 ml gesättigter Natriumbi-  
carbonatlösung und dann mit 20 ml Wasser, trocknet die organische Phase über Nat-  
riumsulfat und destilliert das Lösungsmittel im Vakkum ab. Zurück bleiben 0,56 g  
(93 % der Theorie) N-(2,6-Difluorbenzoyl)-N'-[2-chlor-4-(2-tetrahydropyran-2-yl-  
20 tetrazol-5-yl)-phenyl]-harnstoff mit einem logP(pH2) von 3,72.

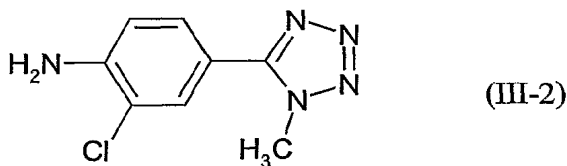
**Beispiel 3:**

5 (Verfahren a)

Zu einer Lösung von 0,3 g (1,4 mMol) 1-Methyl-5-(3-chlor-4-aminophenyl)-tetrazol  
in 10 ml Acetonitril tropft man bei Raumtemperatur eine Lösung von 0,26 g  
(1,4 mMol) 2,6-Difluorbenzoylisocyanat in 10 ml Acetonitril. Das ausgefallene Pro-  
10 dukt wird abgesaugt und mit Acetonitril nachgeaschen.

Man erhält so 0,36 g (65 % der Theorie) N-(2,6-Difluorbenzoyl)-N'-[2-chlor-4-(1-  
methyl-tetrazol-5-yl)]-harnstoff mit einem logP(pH2) von 2,31.

15 **Herstellung des Ausgangsproduktes:**



Eine Mischung aus 3 g (0,015 Mol) 5-(3-Chlor-4-aminophenyl)-tetrazol, 2,8 g  
20 (0,02 Mol) Kaliumcarbonat, 2,84 g (0,02 Mol) Methyliodid und 50 ml Acetonitril  
wird 48 Stunden bei 60°C gerührt. Dann destilliert man das Lösungsmittel im Va-  
kuum ab, schüttelt den Rückstand mit Wasser und Essigester, trennt die organische  
Phase ab und trocknet sie über Natriumsulfat. Das Lösungsmittel wird im Vakuum

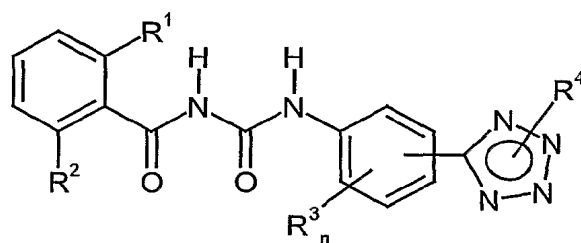
abdestilliert und der Rückstand durch Silikagelchromatographie (Eluat = Methylenchlorid : Diethylether = 11 : 1) gereinigt.

Man erhält so 0,3 g (9,5 % der Theorie) 1-Methyl-(3-chlor-4-aminophenyl)-tetrazol  
5 mit einem logP (pH2) von 1,17.

Analog den Beispielen 1 bis 3 bzw. gemäß den allgemeinen Angaben zur Herstellung  
werden die in der folgenden Tabelle 1 angegebenen Verbindungen der Formel (I) erhalten:

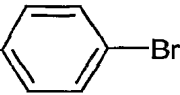

10

**Tabelle 1:**



(I)

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3<sub>n</sub></sup>	Substitutionsposi- tion des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2) bzw. Fp.(°C)
4	F	F	2-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	207
5	F	F	2-Cl	4	2-CH <sub>3</sub>	2,88
6	F	F	4-Cl	2	H	2,16
7	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	H	2,30
8	F	F	2-Cl	4		178
9	F	F	2-Cl	4		3,71

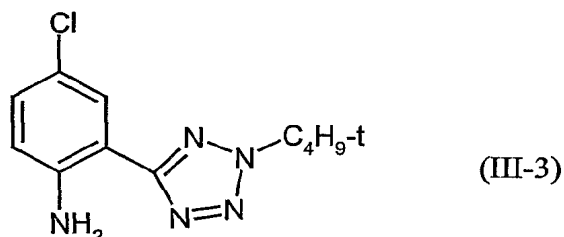
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutionsposi- tion des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2) bzw. Fp.(°C)
10	F	Cl	2-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	201
11	F	F	4-Cl	2	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	4,20
12	F	F	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> -COOCH <sub>3</sub>	200
13	F	F	2-Cl	4	2-(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -OCOCH <sub>3</sub>	204
14	F	F	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	165
15	F	F	2-Cl	4	2-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n	206
16	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	205
17	F	F	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> - 	211
18	F	F	2-Cl	4	2-CHF <sub>2</sub>	189
19	F	F	2-Cl	4	2- 	4,63
20	F	F	2-Cl	4	1-CHF <sub>2</sub>	196
21	F	F	2-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	219
22	F	F	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -CF=CF <sub>2</sub>	196
23	F	F	2,6-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	221
24	F	F	2,6-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	190
25	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	193
26	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n	192
27	F	F	-	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	218
28	F	Cl	-	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	184
29	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-CHF <sub>2</sub>	155
30	F	F	2-Cl <sub>2</sub>	4	2-CH <sub>2</sub> -C( <sup>CH<sub>3</sub></sup> )=CH <sub>2</sub>	174
31	Cl	H	-	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	218
32	Cl	H	2-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	184
33	Cl	H	2,6-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	203
34	Cl	H	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	211

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutionsposi- tion des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2) bzw. Fp.(°C)
35	F	F	3-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	3,68
36	Cl	H	3-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	198
37	F	F	3-F	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	218
38	Cl	H	3-F	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	221
39	F	F	2,6-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	226
40	Cl	H	2,5-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	227
41	F	F	2,5-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	199
42	Cl	H	2,6-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	215
43	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	$\begin{array}{c} \text{CH}_2\text{-CH}_3 \\   \\ \text{---C---CH}_2\text{-CH}_3 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	204
44	F	F	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	$\begin{array}{c} \text{CH}_2\text{-CH}_3 \\   \\ \text{---C---CH}_2\text{-CH}_3 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	216
45	F	F	-	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	193
46	F	F	-	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	191
47	F	F	2-F	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	185
48	F	F	2-F	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	209
49	Cl	H	-	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	197
50	Cl	H	-	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	179
51	F	Cl	-	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	189
52	F	Cl	-	4	$\begin{array}{c} 2\text{---C(C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	191
53	F	F	3, 5-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	216

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutionsposi- tion des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2) bzw. Fp.(°C)
54	F	F	2,3-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	202
55	Cl	H	2,3-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	213
56	F	F	2-F	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	213
57	Cl	H	2-F	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	209
58	F	F	3,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	192
59	Cl	H	3,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	176
60	F	F	2,3-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	164
61	Cl	H	2,3-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	126
62	Cl	H	2-Cl	4	2-CHF <sub>2</sub>	181
63	Cl	H	2-Cl	4	1-CHF <sub>2</sub>	193
64	F	F	-	4	2-CHF <sub>2</sub>	186
65	Cl	H	-	4	2-CHF <sub>2</sub>	168
66	Cl	H	-	4	1-CHF <sub>2</sub>	180
67	F	F	-	4	1-CHF <sub>2</sub>	214
68	Cl	H	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-CHF <sub>2</sub>	158
69	F	F	3-Cl	4	2-CHF <sub>2</sub>	172
70	Cl	H	3-Cl	4	2-CHF <sub>2</sub>	163
71	F	F	3-F	4	2-CHF <sub>2</sub>	194
72	F	F	-	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	188
73	Cl	H	-	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	164
74	F	F	-	3	H	
75	Cl	H	-	3	H	
76	F	F	-	3	2-CHF <sub>2</sub>	169
77	Cl	H	-	3	2-CHF <sub>2</sub>	
78	F	F	-	3	1-CHF <sub>2</sub>	189
79	Cl	H	-	3	1-CHF <sub>2</sub>	
80	F	F	4-Cl	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
81	Cl	H	4-Cl	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
82	F	F	4-Cl	3	2-CHF <sub>2</sub>	

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutionsposi- tion des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2) bzw. Fp.(°C)
83	Cl	H	4-Cl	3	2-CHF <sub>2</sub>	
84	Cl	H	4-Cl	3	1-CHF <sub>2</sub>	
85	F	F	4-Cl	3	1-CHF <sub>2</sub>	
86	F	F	5-CF <sub>3</sub>	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
87	Cl	H	5-CF <sub>3</sub>	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
88	F	F	5-CF <sub>3</sub>	3	2-CHF <sub>2</sub>	
89	Cl	H	5-CF <sub>3</sub>	3	2-CHF <sub>2</sub>	
90	F	F	5-CF <sub>3</sub>	3	1-CHF <sub>2</sub>	
91	Cl	H	5-CF <sub>3</sub>	3	1-CHF <sub>2</sub>	
92	F	F	6-Cl-	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
93	Cl	H	6-Cl-	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
94	F	F	6-Cl-	3	2-CHF <sub>2</sub>	
95	Cl	H	6-Cl-	3	2-CH <sub>2</sub>	
96	F	F	6-Cl-	3	1-CHF <sub>2</sub>	
97	Cl	H	6-Cl-	3	1-CHF <sub>2</sub>	



**Herstellung weiterer Ausgangsprodukte der Formel (III)****Beispiel a:**

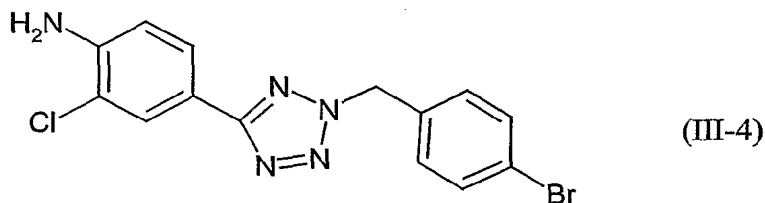
5

Zu einer Mischung aus 5 g (0,026 Mol) 5-(2-Amino-5-chlorphenyl)-tetrazol, 6,5 ml tert.-Butanol und 32 ml Trifluoressigsäure gibt man 1,6 ml konzentrierte Schwefelsäure. Man rührt das Reaktionsgemisch über Nacht, destilliert dann das Lösungsmittel im Vakuum ab und versetzt den Rückstand mit gesättigter Natriumbicarbonatlösung. Das Produkt wird in Essigsäureethylester extrahiert. Die organische Phase trocknet man über Natriumsulfat und destilliert dann das Lösungsmittel im Vakuum ab.

10

Man erhält 5,2 g (80 % der Theorie) 5-(2-Amino-5-chlorphenyl)-2-tert.-butyl-tetrazol mit einem logP(pH2) von 3,58.

15

**Beispiel b:**

20

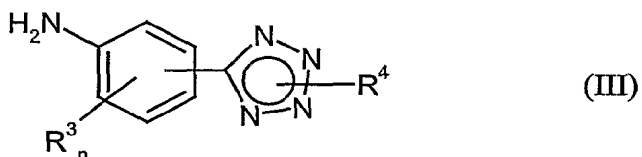
Eine Mischung aus 1 g (5 mMol) 5-(3-Chlor-4-aminophenyl)-tetrazol, 1,37 g (5,5 mMol) 4-Brombenzylbromid, 0,76 g (5,5 mMol) Kaliumcarbonat und 30 ml Acetonitril wird 18 Stunden auf 50 bis 60°C erwärmt. Dann destilliert man das Lösungsmittel im Vakuum ab, den Rückstand schüttelt man mit Wasser und Essigsäure-

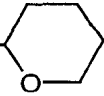

ethylester. Die organische Phase wird abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingedampft.

5 Man erhält 1,8 g (99 % der Theorie) 5-(3-Chlor-4-aminophenyl)-2-(4-brombenzyl)-tetrazol mit einem logP (pH2) von 3,52..

Analog den Beispielen 1, 3 a und b werden die in der folgenden Tabelle 2 angegebenen Verbindungen der Formel (III) erhalten:

10 Tabelle 2:



Bsp.- Nr.	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutions- position des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2)
III-5	2-Cl, 6-CH <sub>3</sub>	4	H	1,20
III-6	2-Cl	4	2-CH <sub>3</sub>	1,70
III-7	4-Cl	2	H	1,50
III-8	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	H	1,16
III-9	3-Cl	4	H	1,53
III-10	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> COOCH <sub>3</sub>	1,92
III-11	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2,34
III-12	2-Cl	4	2-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	2,52
III-13	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> - 	2,59
III-14	2-Cl	4	2-CHF <sub>2</sub>	2,08
III-15	2-Cl	4	2- 	3,28

Bsp.- Nr.	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutions- position des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2)
III-16	2-Cl	4	1-CHCF <sub>2</sub>	1,92
III-17	2-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	2,95
III-18	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -CF=CF <sub>2</sub>	2,68
III-19	2,6-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	3,81
III-20	2,6-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	3,78
III-21	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	3,15
III-22	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n	2,75
III-23	-	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	1,69
III-24	2-Cl	4	2-CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -OCOCH <sub>3</sub>	1,92
III-25	2,6-Cl <sub>2</sub>	4	H	1,40
III-26	2-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	2,94
III-27	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-28	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-CHF <sub>2</sub>	2,69
III-29	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	1-CHF <sub>2</sub>	2,36
III-30	2-Cl	4	1- CHF <sub>2</sub>	1,92
III-31	3-Cl	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	2,42
III-32	3-F	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	2,14
III-33	2,6-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-34	2,5-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-35	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2— $\begin{array}{c} \text{C}(\text{C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	
III-36	2,5-Cl <sub>2</sub>	4	2— $\begin{array}{c} \text{C}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	
III-37	-	4	2— $\begin{array}{c} \text{C}(\text{C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	
III-38	-	4	2— $\begin{array}{c} \text{C}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	
III-39	3-F	4	2— $\begin{array}{c} \text{C}(\text{C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	

Bsp.- Nr.	R <sup>3</sup> <sub>n</sub>	Substitutions- position des Tetrazols am Phenylring	R <sup>4</sup>	logP(pH2)
III-40	3-F	4	2- $\begin{array}{c} \text{C}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	
III-41	3,5-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-42	2,3-F <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-43	2-F	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-44	3,5-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-45	2,3-Cl <sub>2</sub>	4	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-46	-	4	2-CHF <sub>2</sub>	1,49
III-47	-	4	1-CHF <sub>2</sub>	1,24
III-48	3-Cl	4	2-CHF <sub>2</sub>	2,09
III-49	3-Cl	4	1-CHF <sub>2</sub>	1,81
III-50	3-F	4	2-CHF <sub>2</sub>	1,84
III-51	-	3	H	
III-52	-	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-53	-	3	2-CHF <sub>2</sub>	
III-54	-	3	1-CHF <sub>2</sub>	
III-55	4-Cl	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-56	4-Cl	3	2-CHF <sub>2</sub>	
III-57	4-Cl	3	1-CHF <sub>2</sub>	
III-58	5-CF <sub>3</sub>	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-59	5-CF <sub>3</sub>	3	2-CHF <sub>2</sub>	
III-60	5-CF <sub>3</sub>	3	1-CHF <sub>2</sub>	
III-61	6-Cl	3	2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	
III-62	6-Cl	3	2-CHF <sub>2</sub>	
III-63	6-Cl	3	1-CHF <sub>2</sub>	

Die Bestimmung der logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V. A8 durch HPLC (Gradientenmethode, Acetonitril/0,1 % wässrige Phosphorsäure).

**Anwendungsbeispiele:****Beispiel A****5      *Heliothis virescens*-Test**

Lösungsmittel:      30      Gewichtsteile Dimethylformamid  
Emulgator:      1      Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit emulgatorhaltigem Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Sojatriebe (*Glycine max*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit *Heliothis virescens*-Raupen besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

20      Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, dass keine Raupen abgetötet wurden.

Bei diesem Test zeigt bei einer beispielhaften Wirkstoffkonzentration von 0,1 % z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels 4 eine Abtötung von 100 % nach 6 Tagen.

**Beispiel B****Phaedon-Larven-Test**

- 5      Lösungsmittel:      30      Gewichtsteile Dimethylformamid  
Emulgator:      1      Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit emulgatorhaltigem Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Larven des Meerrettichkäfers (*Phaedon cochleariae*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

20      Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass alle Käferlarven abgetötet wurden; 0 % bedeutet, dass keine Käferlarven abgetötet wurden.

Bei diesem Test zeigen bei einer beispielhaften Wirkstoffkonzentration von 0,1 % z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele 4, 10, 16, 18 und 20 eine Abtötung von 100 % nach 7 Tagen.

**Beispiel C****Plutella-Test**

- 5      Lösungsmittel:      30      Gewichtsteile Dimethylformamid  
Emulgator:              1      Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit emulgatorhaltigem Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Raupen der Kohlschabe (*Plutella xylostella*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, dass keine Raupen abgetötet wurden.

20      Bei diesem Test zeigt bei einer beispielhaften Wirkstoffkonzentration von 0,1 % z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels 4 eine Abtötung von 100 % nach 6 Tagen.

**Beispiel D****Spodoptera exigua-Test**

- 5      Lösungsmittel:      30      Gewichtsteile Dimethylformamid  
Emulgator:              1      Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit emulgatorhaltigem Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Raupen des Heerwurms (*Spodoptera exigua*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass alle Raupen abgetötet wurden; 0% bedeutet, dass keine Raupen abgetötet wurden.

20      Bei diesem Test zeigt bei einer beispielhaften Wirkstoffkonzentration von 0,1 % z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels 4 eine Abtötung von 100 % nach 6 Tagen.



**Beispiel E****Spodoptera frugiperda-Test**

- 5      Lösungsmittel:      30      Gewichtsteile Dimethylformamid  
Emulgator:              1      Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit emulgatorhaltigem Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Kohlblätter (Brassica oleracea) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Raupen des Heerwurms (Spodoptera frugiperda) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

20      Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, dass keine Raupen abgetötet wurden.

Bei diesem Test zeigen bei einer beispielhaften Wirkstoffkonzentration von 0,1 % z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele 4, 5, 10, 14, 15, 16, 18 und 20 eine Abtötung von 100 % nach 7 Tagen.

**Beispiel F****Grenzkonzentrations-Test / Bodeninsekten - Behandlung transgener Pflanzen**

5      Testinsekt:      **Diabrotica balteata - Larven im Boden**

Lösungsmittel:    7 Gewichtsteile

Emulgator:        1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Die Wirkstoffzubereitung wird auf den Boden gegossen. Dabei spielt die Konzentration des Wirkstoffs in der Zubereitung praktisch keine Rolle, entscheidend ist allein die Wirkstoffgewichtsmenge pro Volumeneinheit Boden, welche in ppm (mg/l) angegeben wird. Man füllt den Boden in 0,25 l Töpfe und läßt diese bei 20°C stehen.

20      Sofort nach dem Ansatz werden je Topf 5 vorgekeimte Maiskörner der Sorte YIELD GUARD (Warenzeichen von Monsanto Comp., USA) gelegt. Nach 2 Tagen werden in den behandelten Boden die entsprechenden Testinsekten gesetzt. Nach weiteren 7 Tagen wird der Wirkungsgrad des Wirkstoffs durch Auszählen der aufgelaufenen  
25      Maispflanzen bestimmt (1 Pflanze = 20 % Wirkung).

**Beispiel G****Heliothis virescens - Test - Behandlung transgener Pflanzen**

- 5      Lösungsmittel: 7 Gewichtsteile  
Emulgator : 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

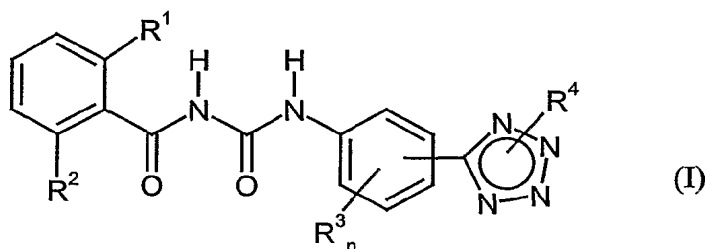
10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Sojabetriebe (Glycine max) der Sorte Roundup Ready (Warenzeichen der Monsanto Comp. USA) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit der Tabakknospenraupe *Heliothis virescens* besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung der Insekten bestimmt.

**Patentansprüche**

## 1. Verbindungen der Formel (I)



in welcher

$R^1$  für Halogen steht,

$R^2$  für Wasserstoff oder Halogen steht,

$R^3$  für Halogen, Alkyl oder Halogenalkyl steht,

$n$  für 0, 1 oder 2 steht und

$R^4$  für Wasserstoff, gegebenenfalls substituiertes Alkyl, gegebenenfalls substituiertes Alkenyl, Alkoxyalkyl, Alkoxy-carbonylalkyl, Alkyl-carbonyloxyalkyl, Alkylsulfonyl, Diaminocarbonyl; jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylalkyl oder Arylsulfonyl; jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl oder jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl oder Heterocyclylalkyl steht.

## 2. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1

in welcher

R<sup>1</sup> für Fluor oder Chlor steht.

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht.

5 R<sup>3</sup> für Fluor, Chlor, Brom, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl steht.

n für 0, 1 oder 2 steht.

10 R<sup>4</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkenyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyloxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-aminocarbonyl, für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen, Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylsulfonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cyclohexyl-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, sowie für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes fünf- oder sechsgliedriges Heterocyclyl oder fünf- oder sechsgliedriges Heterocyclyl-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl mit jeweils 1 oder 2 Heteroatomen, wie N-, O- oder S-Atomen steht.

25 3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1

in welcher

30 R<sup>1</sup> für Fluor oder Chlor steht.

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht.

$R^3$  für Fluor, Chlor, Methyl oder Trifluormethyl steht.

$n$  für 0, 1 oder 2 steht.

5

$R^4$  für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_2$ - $C_4$ -Alkenyl,  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkyl bzw.  $C_2$ - $C_4$ -Halogenalkenyl mit jeweils 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen aus der Reihe Fluor, Chlor und Brom;  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_2$ -alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy-carbonyl- $C_1$ - $C_2$ -alkyl, 10  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl-carboxyloxy- $C_1$ - $C_2$ -alkyl,  $C_1$ - $C_2$ -Alkylsulfonyl, Di-( $C_1$ - $C_2$ -alkyl)-aminocarbonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen, Nitro, Cyano,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkyl oder  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen aus 15 der Reihe Fluor, Chlor und Brom substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylsulfonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy substituiertes Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl; sowie für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch 20  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy substituiertes Tetrahydrofuranyl, Tetrahydrofuranylmethyl, Tetrahydropyranyl oder Tetrahydropyranylmethyl steht

4. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1

25

in welcher

$R^1$  für Fluor oder Chlor steht.

30

$R^2$  für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht.

$R^3$  für Fluor, Chlor oder Trifluormethyl steht.

$n$  für 0, 1 oder 2 steht.

5  $R^4$  für Wasserstoff; Methyl, Ethyl, *n*- oder *i*-Propyl, *n*-, *i*-, *s*- oder *t*-Butyl; 1-Ethyl-1-methyl-propyl, 1,1-Dimethylpropyl, 2-Methyl-2-propenyl, Fluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, 1,1-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 3,4,4-Trifluor-3-butenyl, 4,4-Difluor-3-butenyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, Methylcarbonyloxymethyl, Ethylcarbonyloxymethyl, Methylcarbonyloxyethyl, Ethylcarbonyloxyethyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Dimethylaminocarbonyl, Methylethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl; für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Trifluormethyl oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylsulfonyl; sowie für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach, gleich oder verschieden durch Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Cyclohexyl, Tetrahydropyranyl oder Tetrahydropyranylmethyl steht.

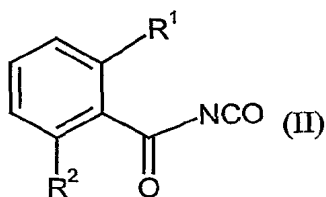
10

15

20

5. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

25 a) Verbindungen der Formel (II)

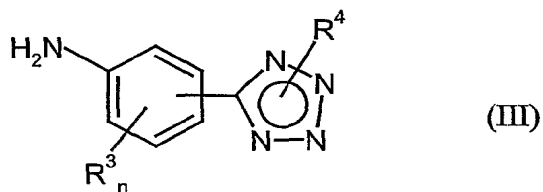


in welcher

$R^1$  und  $R^2$  die oben angegebene Bedeutung haben,

mit Verbindungen der Formel (III)

5



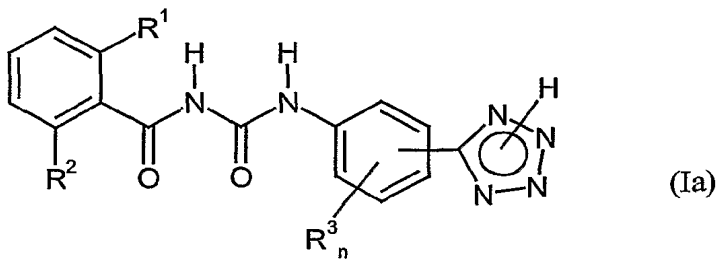
in welcher

$R^3$ ,  $n$  und  $R^4$  die oben angegebene Bedeutung haben,

10

in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt; und

b) gegebenenfalls die so erhaltenen Verbindungen der Formel (Ia)



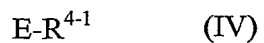
15

in welcher

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $n$  die oben angegebene Bedeutung haben,

20

mit Verbindungen der Formel (IV)



in welcher

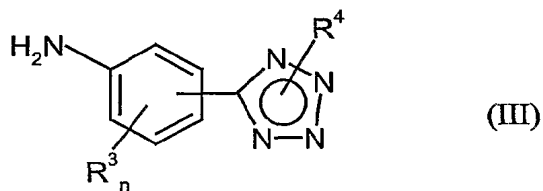


$R^{4-1}$  die oben für  $R^4$  angegebene Bedeutung mit Ausnahme von Wasserstoff besitzt und

5 E für eine anionische Abgangsgruppe steht,

in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors umgesetzt.

10 6. Verbindungen der Formel (III)



in welcher

15

$R^3$  für Chlor, Fluor, Methyl oder Trifluormethyl steht,

n für 1 oder 2 steht,

20  $R^4$  die oben angegebene Bedeutung hat und die Substitutionsposition des Tetrazols am Phenylring in 2-, 3- oder 4-Position ist.

7. Verbindungen der Formel (III) gemäß Anspruch 6,

25 in welcher

n für 0 steht und

$R^4$  und die Substitutionsposition des Tetrazols am Phenylring die in der Tabelle angegebene Bedeutung haben.

$R^4$	Substitutionsposition des Tetrazols am Phenylring
$\begin{array}{c} 2-\text{C}(\text{C}_2\text{H}_5)_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$	4
$\begin{array}{c} 2-\text{C}(\text{CH}_3)_2 \\   \\ \text{C}_2\text{H}_5 \end{array}$	4
2-CHF <sub>2</sub>	3 oder 4
1-CHF <sub>2</sub>	3 oder 4
H	3 oder 4
2-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	3 oder 4

5

8. Schädlingsbekämpfungsmittel und Herbizide, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) gemäß Anspruch 1.
9. Verfahren zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen und unerwünschten Pflanzenbewuchs, dadurch gekennzeichnet, dass man Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
10. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen und unerwünschtem Pflanzenbewuchs.
11. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln und Herbiziden, dadurch gekennzeichnet, dass man Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

12. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln und Herbiziden.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No

PCT/EP 01/04899

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D257/04 C07D405/04 C07D405/06 A01N43/713 A01N47/34

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 056 124 A (BASF AG) 21 July 1982 (1982-07-21) claims 1,5,7	1-12
Y	NAKAGAWA Y ET AL: "QUANTITATIVE STRUCTURE-ACTIVITY STUDIES OF BENZOYLPHENYLUREA LARVICIDES V. SUBSTITUTED PYRIDYLOXYPHENYL AND RELATED DERIVATIVES" PESTICIDE BIOCHEMISTRY AND PHYSIOLOGY, ACADEMIC PRESS, US, vol. 30, no. 1, January 1988 (1988-01), pages 67-78, XP001014578 ISSN: 0048-3575 the whole document	1-12



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*Z\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 September 2001

Date of mailing of the international search report

19/09/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Seymour, L

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Patent Application No

PCT/EP 01/04899

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 4 950 678 A (CARNEY ROBERT L ET AL) 21 August 1990 (1990-08-21) cited in the application column 3, line 12 - line 36; claims 1,19 column 4, line 32 - line 62 ---	1-12
X	US 4 913 726 A (LEVITT GEORGE) 3 April 1990 (1990-04-03) Spalte 18, Formel X claim 1; example 7; table I ---	6
X	DE 933 581 C (FARBWERK HOECHST AG) examples 27-30,41 ---	6
X	US 3 838 126 A (WAGNER E) 24 September 1974 (1974-09-24) column 1, line 51 - line 58; table 1 ---	6
X	DATABASE BEILSTEIN 'Online! BEILSTEIN INSTITUTE FOR ORGANIC CHEMISTRY, FRANKFURT/MAIN, DE; Database accession no. 1109095 (BRN) XP002176678 4-Methyl-2-(1H-tetrazol-5-yl)-anilin & CHEM. HETEROCYCL. COMPD. (ENGL. TRANSL.), 1970, 6, 266, ---	6
X	DATABASE BEILSTEIN 'Online! BEILSTEIN INSTITUTE FOR ORGANIC CHEMISTRY, FRANKFURT/MAIN, DE; Database accession no. 139593 und 139601 (BRN) XP002176679 3- und 4-(1H-tetrazol-5-yl)anilin & J. ORG. CHEM. 1959, 24, 1044, ---	7
P,X	DATABASE CHEMCATS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; 26 April 2001 (2001-04-26) Database accession no. 2001:111457 XP002176680 2-Fluor-4-(1H-tetrazol-5-yl)-anilin ---	6
P,X	DATABASE CHEMCATS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; 26 April 2001 (2001-04-26) Database accession no. 2001:663244 XP002176681 2-Fluor-5-(1H-tetrazol-5-yl)-anilin ---	6
	--- -/--	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Patent Application No.

PCT/EP 01/04899

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	<p>URSINI A ET AL: "SYNTHESIS AND SAR OF NEW 5-PHENYL-3-UREIDO-1,5-BENZODIAZEPINES AS CHOLECYSTOKININ-B RECEPTOR ANTAGONISTS" JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, AMERICAN CHEMICAL SOCIETY. WASHINGTON, US, vol. 43, no. 20, 19 September 2000 (2000-09-19), pages 3596-3613, XP000999557 ISSN: 0022-2623 Tabelle 2, Verbindung 38; Schema 3 -----</p>	7

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

In International Application No

PCT/EP 01/04899

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0056124 A	21-07-1982	DE 3100911 A	05-08-1982
		AT 8134 T	15-07-1984
		DE 3164474 D	02-08-1984
		DK 10782 A,B,	15-07-1982
		GR 75124 A	13-07-1984
		IE 52512 B	25-11-1987
		JP 57140756 A	31-08-1982
		US 4599356 A	08-07-1986
		US 4699923 A	13-10-1987
US 4950678 A	21-08-1990	AT 83477 T	15-01-1993
		AU 602884 B	01-11-1990
		AU 7004887 A	24-09-1987
		BR 8701205 A	12-01-1988
		CN 87102145 A,B	30-09-1987
		DE 3783070 A	28-01-1993
		DE 3783070 T	13-05-1993
		DK 134587 A	19-09-1987
		EG 18296 A	30-10-1992
		EP 0242322 A	21-10-1987
		ES 2053579 T	01-08-1994
		GR 3007051 T	30-07-1993
		HU 43941 A,B	28-01-1988
		IE 60258 B	29-06-1994
		JP 62230765 A	09-10-1987
		KR 9100042 B	19-01-1991
		NZ 219623 A	26-09-1990
		PT 84498 B	10-11-1989
		PT 84498 A	01-04-1987
		SU 1491333 A	30-06-1989
		TR 23211 A	21-06-1989
		ZA 8701996 A	26-10-1988
US 4913726 A	03-04-1990	US 4786311 A	22-11-1988
		US 5017214 A	21-05-1991
		AT 65161 T	15-08-1991
		AU 581317 B	16-02-1989
		AU 5809386 A	04-12-1986
		BR 8602412 A	21-01-1987
		CA 1231336 A	12-01-1988
		DE 3680242 D	22-08-1991
		DK 252186 A	01-12-1986
		EP 0204513 A	10-12-1986
		ES 555484 D	01-07-1987
		ES 8706652 A	16-09-1987
		ES 557392 D	16-02-1988
		ES 8801825 A	01-05-1988
		GR 861386 A	17-09-1986
		HU 41227 A,B	28-04-1987
		IL 78962 A	15-12-1989
		JP 62030756 A	09-02-1987
		KR 9006100 B	22-08-1990
		NO 862137 A	01-12-1986
		NZ 216357 A	29-11-1988
		PT 82666 A,B	01-06-1986
		SU 1660571 A	30-06-1991
		TR 23218 A	21-06-1989
		ZA 8604055 A	27-01-1988

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

In: International Application No

PCT/EP 01/04899

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4913726	A	ZW 11086 A	31-12-1986
		JP 1813399 C	27-12-1993
		JP 3041007 A	21-02-1991
		JP 5020401 B	19-03-1993
		JP 2529012 B	28-08-1996
		JP 3041078 A	21-02-1991
		JP 1872104 C	26-09-1994
		JP 5046344 B	13-07-1993
		JP 62242679 A	23-10-1987
		US 4746353 A	24-05-1988
DE 933581	C	NONE	
US 3838126	A	24-09-1974	NONE



## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. Aktenzeichen

PCT/EP 01/04899

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07D257/04 C07D405/04 C07D405/06 A01N43/713 A01N47/34

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 056 124 A (BASF AG) 21. Juli 1982 (1982-07-21) Ansprüche 1,5,7	1-12
Y	NAKAGAWA Y ET AL: "QUANTITATIVE STRUCTURE-ACTIVITY STUDIES OF BENZOYLPHENYLUREA LARVICIDES V. SUBSTITUTED PYRIDYLOXYPHENYL AND RELATED DERIVATIVES" PESTICIDE BIOCHEMISTRY AND PHYSIOLOGY, ACADEMIC PRESS, US, Bd. 30, Nr. 1, Januar 1988 (1988-01), Seiten 67-78, XP001014578 ISSN: 0048-3575 das ganze Dokument	1-12



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*&amp;\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. September 2001

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

19/09/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Seymour, L

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 4 950 678 A (CARNEY ROBERT L ET AL) 21. August 1990 (1990-08-21) in der Anmeldung erwähnt Spalte 3, Zeile 12 - Zeile 36; Ansprüche 1,19 Spalte 4, Zeile 32 - Zeile 62 ---	1-12
X	US 4 913 726 A (LEVITT GEORGE) 3. April 1990 (1990-04-03) Spalte 18, Formel X Anspruch 1; Beispiel 7; Tabelle I ---	6
X	DE 933 581 C (FARBWERK HOECHST AG) Beispiele 27-30,41 ---	6
X	US 3 838 126 A (WAGNER E) 24. September 1974 (1974-09-24) Spalte 1, Zeile 51 - Zeile 58; Tabelle 1 ---	6
X	DATABASE BEILSTEIN 'Online! BEILSTEIN INSTITUTE FOR ORGANIC CHEMISTRY, FRANKFURT/MAIN, DE; Database accession no. 1109095 (BRN) XP002176678 4-Methyl-2-(1H-tetrazol-5-yl)-anilin & CHEM. HETEROCYCL. COMPD. (ENGL. TRANSL.), 1970, 6, 266, ---	6
X	DATABASE BEILSTEIN 'Online! BEILSTEIN INSTITUTE FOR ORGANIC CHEMISTRY, FRANKFURT/MAIN, DE; Database accession no. 139593 und 139601 (BRN) XP002176679 3- und 4-(1H-tetrazol-5-yl)anilin & J. ORG. CHEM. 1959, 24, 1044, ---	7
P,X	DATABASE CHEMCATS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; 26. April 2001 (2001-04-26) Database accession no. 2001:111457 XP002176680 2-Fluor-4-(1H-tetrazol-5-yl)-anilin ---	6
P,X	DATABASE CHEMCATS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; 26. April 2001 (2001-04-26) Database accession no. 2001:663244 XP002176681 2-Fluor-5-(1H-tetrazol-5-yl)-anilin --- -/--	6

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intl. Aktenzeichen  
PCT/EP 01/04899

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, X	<p>URSINI A ET AL: "SYNTHESIS AND SAR OF NEW 5-PHENYL-3-UREIDO-1,5-BENZODIAZEPINES AS CHOLECYSTOKININ-B RECEPTOR ANTAGONISTS" JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, AMERICAN CHEMICAL SOCIETY. WASHINGTON, US, Bd. 43, Nr. 20, 19. September 2000 (2000-09-19), Seiten 3596-3613, XP000999557 ISSN: 0022-2623 Tabelle 2, Verbindung 38; Schema 3</p>	7

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. les Aktenzeichen

PCT/EP 01/04899

Im Recherchenbericht angeführtes Patendokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0056124 A	21-07-1982	DE 3100911 A	05-08-1982
		AT 8134 T	15-07-1984
		DE 3164474 D	02-08-1984
		DK 10782 A,B,	15-07-1982
		GR 75124 A	13-07-1984
		IE 52512 B	25-11-1987
		JP 57140756 A	31-08-1982
		US 4599356 A	08-07-1986
		US 4699923 A	13-10-1987
US 4950678 A	21-08-1990	AT 83477 T	15-01-1993
		AU 602884 B	01-11-1990
		AU 7004887 A	24-09-1987
		BR 8701205 A	12-01-1988
		CN 87102145 A,B	30-09-1987
		DE 3783070 A	28-01-1993
		DE 3783070 T	13-05-1993
		DK 134587 A	19-09-1987
		EG 18296 A	30-10-1992
		EP 0242322 A	21-10-1987
		ES 2053579 T	01-08-1994
		GR 3007051 T	30-07-1993
		HU 43941 A,B	28-01-1988
		IE 60258 B	29-06-1994
		JP 62230765 A	09-10-1987
		KR 9100042 B	19-01-1991
		NZ 219623 A	26-09-1990
		PT 84498 B	10-11-1989
		PT 84498 A	01-04-1987
		SU 1491333 A	30-06-1989
		TR 23211 A	21-06-1989
		ZA 8701996 A	26-10-1988
US 4913726 A	03-04-1990	US 4786311 A	22-11-1988
		US 5017214 A	21-05-1991
		AT 65161 T	15-08-1991
		AU 581317 B	16-02-1989
		AU 5809386 A	04-12-1986
		BR 8602412 A	21-01-1987
		CA 1231336 A	12-01-1988
		DE 3680242 D	22-08-1991
		DK 252186 A	01-12-1986
		EP 0204513 A	10-12-1986
		ES 555484 D	01-07-1987
		ES 8706652 A	16-09-1987
		ES 557392 D	16-02-1988
		ES 8801825 A	01-05-1988
		GR 861386 A	17-09-1986
		HU 41227 A,B	28-04-1987
		IL 78962 A	15-12-1989
		JP 62030756 A	09-02-1987
		KR 9006100 B	22-08-1990
		NO 862137 A	01-12-1986
		NZ 216357 A	29-11-1988
		PT 82666 A,B	01-06-1986
		SU 1660571 A	30-06-1991
		TR 23218 A	21-06-1989
		ZA 8604055 A	27-01-1988

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. es Aktenzeichen  
PCT/EP 01/04899

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4913726 A		ZW 11086 A	31-12-1986
		JP 1813399 C	27-12-1993
		JP 3041007 A	21-02-1991
		JP 5020401 B	19-03-1993
		JP 2529012 B	28-08-1996
		JP 3041078 A	21-02-1991
		JP 1872104 C	26-09-1994
		JP 5046344 B	13-07-1993
		JP 62242679 A	23-10-1987
		US 4746353 A	24-05-1988
DE 933581 C		KEINE	
US 3838126 A	24-09-1974	KEINE	